

ZUR HYDRODYNAMIK ZWEIPHASIG DURCHSTRÖMTER SCHÜTTSCHICHTEN

Volumenanteile, Druckverlust und Axialdispersion
der gasförmigen und flüssigen Phase in Aufstromkolonnen

von

Wolfgang Heilmann

Erlangen 1969

1969 410 110 186

Digitized by the Internet Archive
in 2026

ZUR HYDRODYNAMIK ZWEPHASIG DURCHSTRÖMTER SCHÜTTSCHICHTEN

Volumenanteile, Druckverlust und Axialdispersion
der gasförmigen und flüssigen Phase in Aufstromkolonnen

Der Technischen Fakultät
der Universität Erlangen-Nürnberg
zur Erlangung des Grades
DOKTOR - INGENIEUR

vorgelegt

von

Wolfgang Heilmann

Erlangen 1969



Tag der Einreichung: 1.4.1969

Tag der Promotion: 5.5.1969

Dekan: Prof.Dr.B. Ilschner

Berichterstatter: Prof.Dr.H. Hofmann
Prof.Dr.O. Molerus

I. Einleitung	1
II. Volumenanteil und Strömungsform der Gasphase	5
1. Meßmethoden zur Bestimmung des Gasvolumenanteils	5
1.1 Der statische Druck als Maß für die Dichte der Mischphase	6
1.2 Die Überlaufmethode	7
1.3 Die Umlaufmethode	8
1.4 Die Durchstrahlungsmethode	8
2. Statischer und dynamischer Gasvolumenanteil	10
3. Meßergebnisse und deren Deutung	14
3.1 Der Einfluß des Gasdurchsatzes	14
3.2 Der Einfluß der Schüttung und des Anströmbodens	16
3.3 Der Einfluß von Zähigkeit und Oberflächenspannung der Flüssigkeit	19
3.4 Der Einfluß der Flüssigkeitgeschwindigkeit	21
3.5 Der Einfluß der Kolonnenhöhe	25
4. Mittlere Blasengröße und spezifische Phasengrenzfläche	31
5. Strömungsform und Aufstiegsgeschwindigkeit der Gasphase	35
III. Der Druckverlust der strömenden Phasen	46
1. Übersicht	46
2. Die Druckänderung in ruhender Flüssigkeit	48
2.1 Reibung Gas - Flüssigkeit	49
2.2 Reibung Gas - Füllkörper	50
2.3 Die Beschreibung des Druckverlaufs	53
2.4 Die Gesamtdruckänderung	57
3. Der Druckverlust bei Einphasenströmung	59
4. Der Gesamtdruckverlust bei strömender Gas- und Flüssigphase	64

IV. Die Axialdispersion der flüssigen Phase	70
1. Theoretische Grundlagen	70
1.1 Die Bedeutung der Dispersion	70
1.2 Experimenteller Nachweis der Axialdispersion	71
1.3 Die Bestimmung des Dispersionskoeffizienten aus der Verweilzeitverteilungskurve	73
2. Versuchsdurchführung und Auswertung	77
2.1 Die Versuchsanlage	77
2.2 Die digitale Datenerfassung	81
2.21 Die Handeingabe	85
2.22 Die Linearität der Anlage	85
2.23 Die Einstellzeit der Anlage	87
2.24 Meßwertschwankung und Ziffernhäufigkeit	87
2.3 Die Auswertung der Meßdaten	89
3. Ergebnisse	97
3.1 Der Dispersionskoeffizient in Blasensäulen	97
3.2 Der Dispersionskoeffizient in Schütttschichten	99
3.3 Die Korrelation der Meßergebnisse	103
4. Der Einfluß der Axialdispersion auf den Umsatz bzw. Austauschgrad	108
4.1 Der Einfluß auf den Umsatz in einem Schütttschichtreaktor	108
4.2 Der Einfluß auf den Austauschgrad einer Absorptionskolonne	112
V. Die Axialdispersion der Gasphase	117
1. Theoretische Grundlagen	117
1.1 Die Anwendung des Dispersionsmodells auf die verteilte Gasphase	117
1.2 Der Einfluß der Löslichkeit des Spurgases auf die Varianz der Verweilzeitverteilungs- funktion	119

2. Versuchsdurchführung und Auswertung	128
2.1 Anwendung des Differenzenverfahrens	128
2.2 Vereinfachtes Meßverfahren	129
2.3 Die Auswertung der Meßergebnisse	129
3. Experimentelle Ergebnisse und Vergleich mit ähnlichen Systemen	131
VI. Zusammenfassung	135
VII. Anhang	141
A1 Eichung der Meßeinrichtung für die γ -Strahlungsabsorption	143
A2 Korrelation der Korrekturfunktion	144
A3 Elektrische Schaltpläne der Handeingabe	148
A4 Algolprogramm zur Berechnung des axialen Dispersionskoeffizienten der flüssigen Phase	150
A5 Algolprogramm zur Berechnung des axialen Dispersionskoeffizienten der Gasphase	156
VIII. Symbolverzeichnis	157
IX. Literaturverzeichnis	161

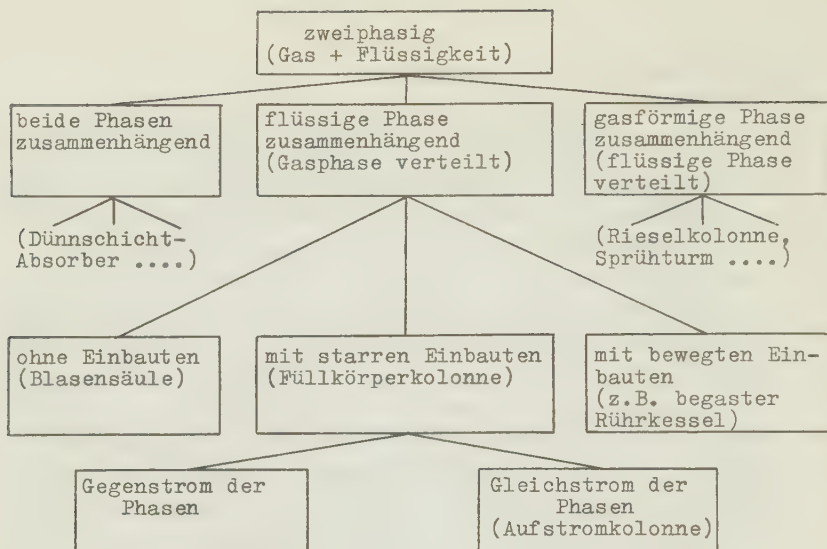
I. Einleitung

=====

In der Chemischen Technik dienen viele Apparate dem Zweck, Flüssigkeiten und Gase miteinander in Berührung zu bringen, um einen Stoffaustausch zwischen den beiden meist kontinuierlich durchgesetzten Phasen zu bewirken. Häufig wird dazu eine Füllkörperkolonne verwendet, in welcher durch eine Schüttung inerte Füllkörper eine möglichst große Austauschfläche zwischen den strömenden Phasen geschaffen werden soll. Nicht nur bei den Stofftrennverfahren, sondern auch auf dem Gebiet der Reaktionstechnik gewann dieser Apparatetyp in letzter Zeit an Bedeutung. Als zweiphasig durchströmter Schüttungsschichtreaktor wird er z.B. in der Petrochemie zur katalytischen Hydrierung und Entschwefelung verwendet. Parallel zu diesem Einsatz für immer kompliziertere chemisch-technische Probleme steigen auch die Anforderungen an die Beschreibung des physikalischen und chemischen Geschehens in solchen Kolonnen.

Der Kontakt zwischen der gasförmigen und flüssigen Phase kann grundsätzlich auf zwei verschiedene Arten realisiert werden. Entweder strömen beide Phasen zusammenhängend durch den Reaktor oder die eine Phase liegt in der anderen als verteilte Phase in Form von Blasen oder Tropfen vor. Da die Austauschfläche und die angestrebte Relativgeschwindigkeit zwischen den Phasen im Falle der Verteilung einer Phase sehr viel größer ist, wird fast ausschließlich die letztgenannte Strömungsform gewählt. Da weiterhin die durch die Relativgeschwindigkeit verursachte Turbulenz, die den Stofftransportkoeffizienten wesentlich verbessert, hauptsächlich in der zusammenhängenden Phase auftritt, versucht man, die Phase mit dem größeren Stofftransportwiderstand als zusammenhängende zu wählen.

Damit ergeben sich, unterteilt nach Art der Strömungsform, folgende Möglichkeiten für den Betrieb zweiphasig durchströmter Apparate:



Während über das hydrodynamische Verhalten der meisten in dem Schema enthaltenen Apparatetypen schon Untersuchungen vorliegen, waren über Aufstromkolonnen bisher noch keine ausführlichen Daten zugänglich. Nachdem zur Klärung einzelner Detailfragen am Institut für Chemische Technologie der Technischen Hochschule Darmstadt bereits eine Reihe von Arbeiten ¹⁻⁵⁾ durchgeführt wurden, war es Ziel dieser Arbeit, die experimentellen Untersuchungen über Aufstromkolonnen zu einem gewissen Abschluß zu bringen und die für die Dimensionierung solcher Kolonnen notwendigen hydrodynamisch bedingten Faktoren zu korrelieren. Es sind dies im wesentlichen drei physikalische Größen, die neben den reaktionskinetischen Daten und den Stoffübergangskoeffizienten zur Vorausberechnung des Umsatzes bekannt sein müssen:

- 1) Der Volumenanteil und die Verweilzeit beider Phasen in dem Reaktor
- 2) Die Axialvermischung der Flüssigphase
- 3) Die Axialvermischung der Gasphase

Kolonne	Füllkörper		Porosität der Schüttung $\varepsilon [-]$	Anström- boden	Flüssige Phase			
	d_p [mm]	Material			Art	$V_F \frac{\text{cm}^2}{\text{g}}$	$\gamma_F \frac{\text{P}}{\text{cm}^3}$	$\sigma_F \frac{\text{dyn}}{\text{cm}}$
A	10	Raschigringe	0,67	Spiral- rohr	Wasser	0,01	1,0	72
		Steinzeug			Wasser+ Glycerin	0,014 0,018	1,03 1,06	72 72
B	10	Raschigringe	0,67	Spiral- rohr	Wasser	0,01	1,0	72
		Steinzeug			Wasser+ Glycerin	0,014 0,018	1,03 1,06	72 52
C	11,5	Raschigringe	0,61	Düsen- boden	CHCl-CCl ₂ + CCl ₄	0,0081	1,53	31
		Glas			Wasser	0,01	1,0	72
B	12	Kugeln	0,41	Spiral- rohr	Wasser	0,01	1,0	72
		Steinzeug						
B	10x20	Zylinder	0,41	Spiral- rohr	Wasser	0,01	1,0	72
		Porzellan						
A	20	Kugeln	0,402	Düsen- boden	Wasser	0,01	1,0	72
		Glas						
D	keine		1	Düsen- boden	Wasser	0,01	1,0	72

Tabelle 1

II. Volumenanteil und Strömungsform der Gasphase

1. Meßmethoden zur Bestimmung des Gasvolumenanteils

Der Volumenanteil der Gasphase ist als Verhältnis des Gasvolumens zum Gesamtvolumen der Kolonne definiert:

$$\epsilon_G = V_G/V^*)$$

Entsprechend gilt für die Flüssigphase $\epsilon_F = V_F/V$ und für den Volumenanteil der Füllkörper $\epsilon_p = V_p/V$. Der Anteil des Zwischenraumvolumens^{**)} am Gesamtvolumen beträgt demnach:

$$\epsilon = \epsilon_F + \epsilon_G = 1 - \epsilon_p$$

Zur experimentellen Bestimmung des Gasvolumenanteils in Apparaten mit verteilter Gasphase werden in der Literatur im wesentlichen folgende Verfahren beschrieben:

- a) Änderung der Höhe des Flüssigkeitsspiegels infolge der Begasung^{21,24)},
- b) Schnellschlußmethode, Ausmessen des Trennspiegels¹⁰⁾,
- c) Bestimmung des verdrängten Flüssigkeitsvolumens in konstanten Zeitabständen¹⁰⁾,
- d) Photographische Ermittlung der Aufstiegsgeschwindigkeit des steigenden Flüssigkeitsspiegels¹⁰⁾,
- e) Bestimmung der Aufstiegsgeschwindigkeit des Trennspiegels zwischen Flüssigphase und Mischphase nach Abstellen des Gasdurchsatzes¹⁶⁾,
- f) Absorption von Licht als Funktion der Dichte der Mischphase²²⁾,
- g) Durchstrahlungsverfahren (s. II.1.4)^{22,23)},

*) Im folgenden sind alle Angaben als Mittelwerte über die Kolonnenhöhe zu verstehen, wenn sie nicht durch (x), (o) oder (H) als örtliche Größen gekennzeichnet sind.

**) Das Zwischenraumvolumen der verwendeten Schüttungen (Schüttporosität) wurde sowohl durch Auslitern als auch aus dem spezifischen Volumen und dem Gesamtgewicht der Füllkörper bestimmt.

- h) Ermittlung von ε_G aus Gasdurchsatz, Kolonnenvolumen und mittlerer Verweilzeit der Gasphase¹²⁾,
- i) Bestimmung der Dichte der Mischphase über Druckmessungen (s. II.1.1)^{12,17)},
- k) Messung des mit wachsendem Gasdurchsatz zunehmenden elektrischen Widerstands der Schüttung²⁵⁾
- l) Ermittlung der mit wachsendem Gasvolumenanteil abnehmenden elektrostatischen Kapazität eines von beiden Phasen durchströmten Kondensators³⁸⁾.

Die vier im Rahmen dieser Arbeit angewendeten Methoden (s. Abb. 2) sollen hier näher beschrieben werden.

1.1 Der statische Druck als Maß für die Dichte der Mischphase

Unter der Voraussetzung, daß die Druckänderung in der Kolonne infolge der Begasung lediglich durch Auftriebskräfte hervorgerufen wird, kann man den Gasvolumenanteil aus der Druckabnahme berechnen. Denkt man sich die beiden Phasen homogen durchmischt mit einem scheinbaren spezifischen Gewicht γ^* , so gilt (s. Abb. 2):

$$h \cdot \gamma_F = (H-x) \cdot \gamma^* \quad (1)$$

Die aus den aufsteigenden Gasblasen (V_{Gdyn}) und der ruhenden Flüssigkeit bestehende Mischphase setzt sich den Volumenanteilen entsprechend zusammen:

$$(\varepsilon - \varepsilon_{Gstat}) \cdot \gamma^* = \varepsilon_{Gdyn} \cdot \gamma_G + \varepsilon_F \cdot \gamma_F^*)$$

Mit $\varepsilon_F = \varepsilon - \varepsilon_{Gstat} - \varepsilon_{Gdyn}$ wird:

$$\gamma^* = \gamma_F - \frac{\varepsilon_{Gdyn}}{\varepsilon - \varepsilon_{Gstat}} (\gamma_F - \gamma_G)$$

Da γ_G gegenüber γ_F vernachlässigt werden kann, wird

*) Der dynamische und statische Gasvolumenanteil wird in Kapitel II.2 erklärt.

$$\gamma^* = \gamma_F \left(1 - \frac{\mathcal{E}_{Gdyn}}{\mathcal{E} - \mathcal{E}_{Gstat}} \right)$$

Setzt man diese Beziehung in Gleichung (1) ein, so folgt mit $\mathcal{E}_G = \mathcal{E}_{Gdyn} + \mathcal{E}_{Gstat}$ für den mittleren Gasvolumenanteil:

$$\mathcal{E}_G = \mathcal{E} - \frac{h}{H-x} (\mathcal{E} - \mathcal{E}_{Gstat}) \quad (2)$$

Bei Blasensäulen, in denen nur geringe Reibung zwischen Gasblasen und Wand auftritt, ist dieses Verfahren bei ruhender Flüssigkeit und kleinen Gasdurchsätzen anwendbar (s. Kurve g, Abb. 5). Da hier der statische Gasvolumenanteil null ist, wird

$$\mathcal{E}_G = \mathcal{E} \left(1 - \frac{h}{H-x} \right)$$

Wird jedoch die Druckänderung nicht nur durch Auftriebskräfte, sondern zusätzlich noch durch Reibung einer der beiden strömenden Medien an den Einbauten und der Kolonnenwand verursacht, dann versagt dieses Verfahren (s. auch III.2).

1.2 Die Überlaufmethode

Eine einfache und sichere Methode zur Bestimmung des Gasvolumenanteils bei ruhender Flüssigkeit besteht darin, die bei bestimmten Gasdurchsätzen verdrängte Flüssigkeitsmenge ($V_{\bar{u}}$) zu messen. Da diese dem in der Kolonne enthaltenen Gasvolumen entspricht, ist einfach $\mathcal{E}_G = V_{\bar{u}}/V$ (s. auch ^{1,2,3,5}). Ein Nachteil der Methode besteht jedoch darin, daß geringe kurzzeitige Schwankungen des Gasdurchsatzes über den Sollwert sofort den Überlauf vergrößern und damit ein zu hohes $\mathcal{E}_G$ vortäuschen.

1.3 Die Umlaufmethode

Mißt man die durch die Gasphase verdrängte Wassermenge gravimetrisch innerhalb des Flüssigkeitskreislaufes, so kann man die Überlaufmethode auch bei strömender Flüssigkeit anwenden. Diese kontinuierliche Methode gestattet sehr exakte Messungen bei allen Gas- und Flüssigkeitgeschwindigkeiten und wurde daher fast ausschließlich zur Bestimmung von ϵ_G verwendet, das sich hier einfach aus der Gewichtszunahme des Pufferbehälters bei Begasung zu

$$\epsilon_G = \frac{\Delta G_F / \delta_F^*}{V}$$

berechnen läßt.

1.4 Die Durchstrahlungsmethode

Bei den bisher genannten Verfahren mißt man jeweils nur einen integralen Mittelwert des Gasvolumenanteils über die Höhe der Kolonne. Will man jedoch z.B. die Änderung von ϵ_G mit der Höhe erfassen, so muß man zu örtlichen Meßverfahren übergehen. Da sich die Dichte der Mischphase entsprechend dem Gasgehalt ändert, kann man die von der Dichte abhängende Absorption von γ -Strahlen zur Messung des Gasvolumenanteils heranziehen.

So wurde hier (s. Kap. II., 3.4 und 3.5) der nichtabsorbierte Anteil der Strahlung einer Strahlungsquelle (Sr 90-Y 90; 1,5 Curie) nach Durchdringung der Füllkörperkolonne von 30,5 cm Durchmesser mit einem Ionisationsdetektor gemessen. Das Ausgangssignal des Detektors wurde verstärkt und mit einem Schreiber aufgezeichnet. Bei entsprechender Eichung der Meßeinrichtung (s. Anhang A1) konnte somit der Gasvolumenanteil ohne Eingriffe in das System bestimmt werden.

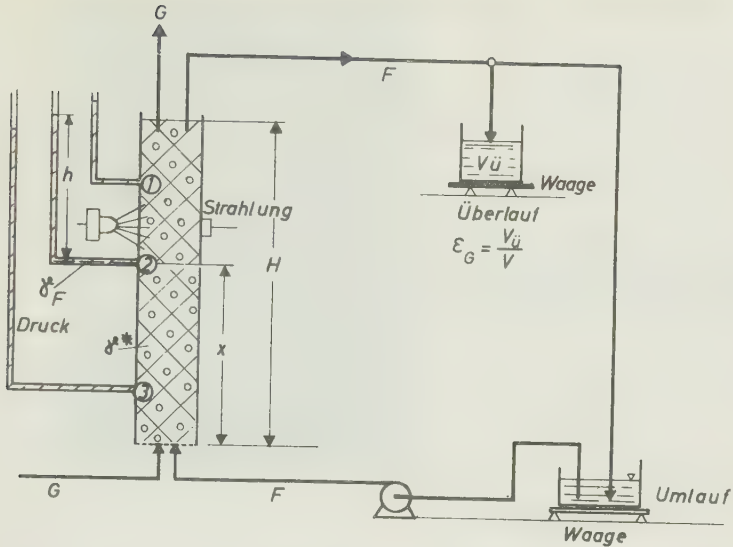


Abb.2: Methoden zur Bestimmung des Gasvolumenanteils

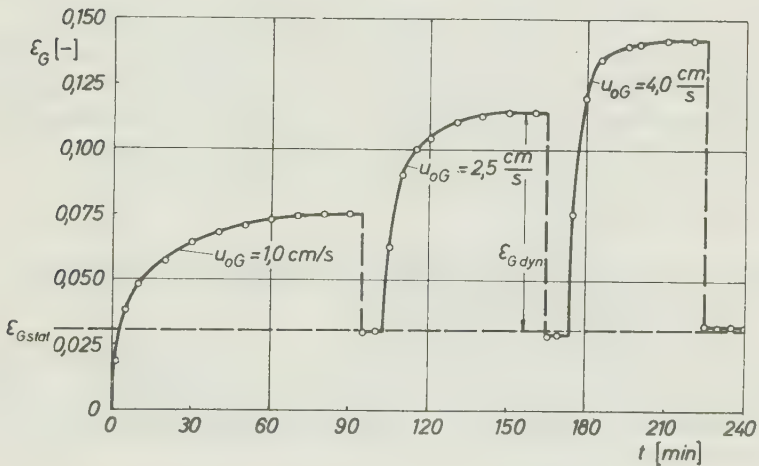


Abb.3: Sättigung einer Raschigringschüttung mit Luftblasen

2. Statischer und dynamischer Gasvolumenanteil

Bei den ϵ_G -Messungen stellte sich heraus, daß nach vorangegangener Begasung ein je nach Art der Schüttung verschieden großer Anteil der Gasblasen in der Kolonne bleibt. Dieser statische Gasvolumenanteil, der bei den früheren Arbeiten nicht berücksichtigt wurde, läßt sich mit Hilfe der Umlaufmethode leicht nachweisen. Abb. 3 zeigt den zeitlichen Verlauf des Anstiegs von ϵ_G für verschiedene Gasgeschwindigkeiten. Wenn nach ziemlich langer Zeit die Schüttung mit Luftblasen "gesättigt" ist, fällt ϵ_G nach Abstellen des Gasdurchsatzes nicht mehr auf null, sondern auf den Wert von ϵ_{Gstat} . Die ständige Kontrolle der Temperatur, der Oberflächenspannung und der Viskosität der Flüssigkeit während des in Abb. 3 dargestellten vierstündigen Versuches zeigte, daß diese Werte nahezu konstant blieben und somit den Gasvolumenanteil nicht beeinflussen konnten.

Ein optischer Nachweis dieses statischen Gasgehaltes ist möglich durch Verwendung einer Glaskolonne mit Glasfüllkörpern, in der die flüssige Phase den gleichen Brechungsindex wie das Glas besitzt. Abb. 4 zeigt eine Aufnahme der im Rahmen dieser Arbeit für optische Untersuchungen verwendeten Kolonne (C) mit Gasblasen, die nach vorangegangener Begasung in der Schüttung hängengeblieben sind. Die flüssige Phase besteht aus einer Mischung von Trichloräthylen ($n_D=1,4784$) und Tetrachlorkohlenstoff ($n_D=1,4664$), deren Verhältnis so eingestellt wird, daß genau der Brechungsindex des verwendeten Duranglases ($n_D=1,473$) erreicht wird.

Nach der Umlaufmethode wurden die in Tabelle 2 aufgeführten Werte für ϵ_{Gstat} gemessen.

Während bei großen Glaskugeln überhaupt kein statischer Gasvolumenanteil gefunden wird, nimmt er bei Raschigringen schon beträchtliche Werte an, vor allem bei höheren Zähigkeiten der Flüssigkeit.



Abb.4:

Statischer Gasvolumenanteil in einer Kolonne mit Glas-Raschigringen (Glas und Flüssigkeit von gleichem Brechungsindex)

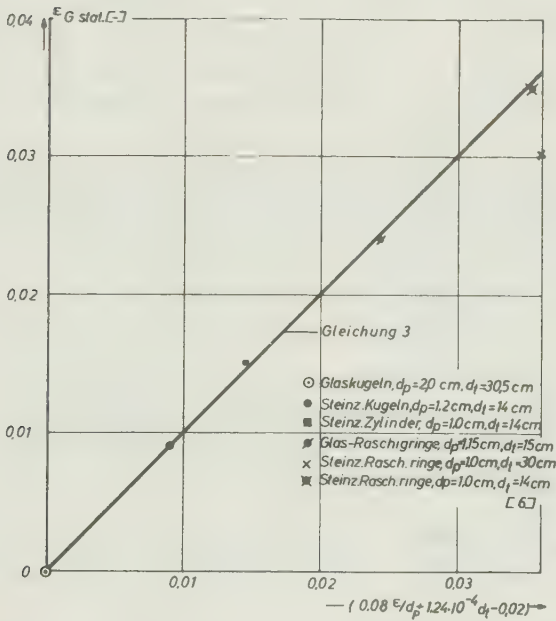


Abb.5: Korrelation des statischen Gasvolumenanteils

Tabelle 2

Schüttung	d_p [mm]	d_t [cm]	ϵ [-]	v_F [cm ² /s]	ϵ_{Gstat} [-]
Glaskugeln	20	30,5	0,402	0,01	0
Steinzeug- kugeln	12	14	0,41	0,01	0,009
Porzellan- zylinder	10x20	14	0,41	0,01	0,015
Raschigringe, Glas	11,5	15	0,61	0,01	0,024
Raschigringe, Steinzeug	10	30,5	0,67	0,01	0,03
Raschigringe, Steinzeug	10	14	0,67	0,01	0,035
				0,014	0,054
				0,018	0,072

Da ϵ_{Gstat} mit wachsender Schüttporosität ϵ und mit abnehmendem Füllkörperdurchmesser d_p zunimmt, kann man folgende Abhängigkeit annehmen:

$$\epsilon_{Gstat} = a \cdot \epsilon / d_p + b$$

Berücksichtigt man noch den relativ kleinen Einfluß des Kolonnendurchmessers d_t (Gasblasen bleiben nur innerhalb der Schüttung, nicht an der glatten Wand hängen), so kann man folgende empirische Korrelation aufstellen:

$$\epsilon_{Gstat} = \underbrace{0,08 \epsilon / d_p}_a + \underbrace{1,2 \cdot 10^{-4} d_t - 0,02}_{b} \quad (d_p, d_t \text{ in [cm]}) \quad (3)$$

Abb. 5 zeigt, daß mit dieser Gleichung die gemessenen Werte mit Ausnahme des an der Raschigringschüttung ($d_t=30,5\text{cm}$) ermittelten recht gut beschrieben werden können.

Unter Berücksichtigung dieses stärker abweichenden Wertes beträgt die Standardabweichung:

$$s = \sqrt{\frac{\sum (\xi_{\text{Gstat,gerechnet}} - \xi_{\text{Gstat,exp}})^2}{N-1}} = 3,3 \cdot 10^{-3}$$

Damit läge der Term $1,2 \cdot 10^{-4} d_t$ innerhalb der Standardabweichung und würde die Aussagekraft von Gleichung (3) nicht verbessern. Eliminiert man dagegen den abweichenden Wert der Raschigringschüttung in Kolonne A, dann ist

$$s = 0,324 \cdot 10^{-3}$$

womit der Einfluß des Kolonnendurchmessers signifikant wird. Ein Einfluß der Rauigkeit des Füllkörpermateri als (Glas-Steinzeug-Porzellan) konnte nicht festgestellt werden.

Ob der ruhende Gasanteil auch während der Begasung der Kolonne inaktiv bleibt, d.h. nicht am Stoffaustausch teilnimmt, wurde in einer Studienarbeit⁶⁾ näher untersucht. Dazu wurde eine Raschigringkolonne mit Helium begast, so daß der statische Gasvolumenanteil aus Helium bestand. Nach Beginn der Luftzufuhr wurde am Kopf der Kolonne die verdrängte Heliummenge gemessen. Dabei stellte sich heraus, daß praktisch der gesamte, bisher statisch genannte Gasanteil verdrängt wurde (Näheres s.⁶⁾). Es gibt also bei Aufstromkolonnen einen statischen, jedoch keinen inaktiven Gasleerraumanteil, der bei der Dimensionierung berücksichtigt werden müßte, wie dies etwa bei Rieselkolonnen für die Flüssigphase der Fall ist (s.z.B.³⁵⁾).

3. Meßergebnisse und deren Deutung

3.1 Der Einfluß des Gasdurchsatzes

Trägt man den in den verschiedenen Systemen gemessenen Gasvolumenanteil über der auf den leeren Kolonnenquerschnitt bezogenen Gasgeschwindigkeit $u_{OG} = \dot{q}_G(H)/F$ auf, so erhält man stets ähnliche gekrümmte Kurven (Abb. 6). Daß ϵ_G nicht linear mit dem Gasdurchsatz ansteigt, liegt daran, daß sich die effektive Aufstiegsgeschwindigkeit und damit die mittlere Verweilzeit der Gasphase mit u_{OG} ändert. Auf den Zusammenhang zwischen Gasdurchsatz, Blasengröße und Aufstiegsgeschwindigkeit wird in Abschnitt 4 und 5 noch näher eingegangen.

Einen ersten Ansatz für die Abhängigkeit des Gasvolumenanteils vom Gasdurchsatz erhält man aus der Kontinuitätsgleichung für die Gasphase. Diese lautet für den stationären Zustand (s. Modelldarstellung in Abb. 7)

$$F \cdot \epsilon_G \cdot \epsilon_{Gdyn} \cdot u_G = \dot{q}_G(H) \cdot S_G(H) \quad (4)$$

$\dot{q}_G(H)$ ist der Gasdurchsatz, der unter den am Kolonnenkopf herrschenden Bedingungen (hier stets Atmosphärendruck und Raumtemperatur) gemessen wird.

Mit $u_{OG} = \dot{q}_G(H)/F$ und $S_G = M \cdot p/RT$ (für annähernd ideale Gase) wird

$$\epsilon_{Gdyn} = \frac{p(H)}{p} \cdot \frac{u_{OG}}{u_G} \quad (5)$$

Da sowohl der mittlere Druck p als auch die effektive mittlere Blasenaufstiegsgeschwindigkeit u_G von u_{OG} abhängen, kann man hier, ähnlich wie z.B. Calderbank et al.²²⁾, folgende Beziehung zwischen ϵ_{Gdyn} und u_{OG} annehmen:

$$\epsilon_{Gdyn} = c \cdot u_{OG}^q$$

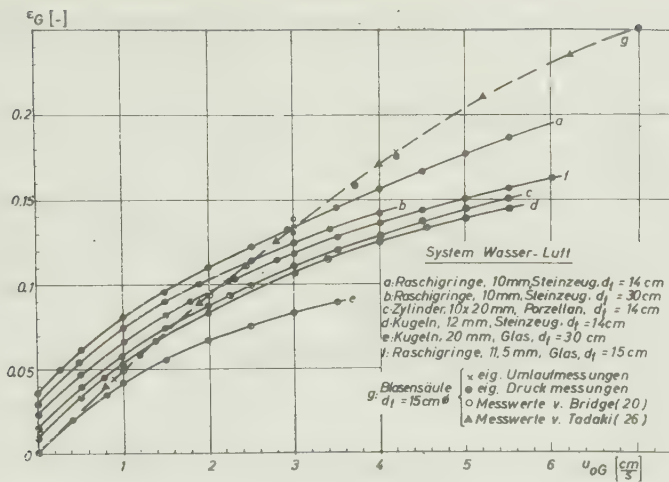


Abb.6: Gasvolumenanteil als Funktion des Gasdurchsatzes

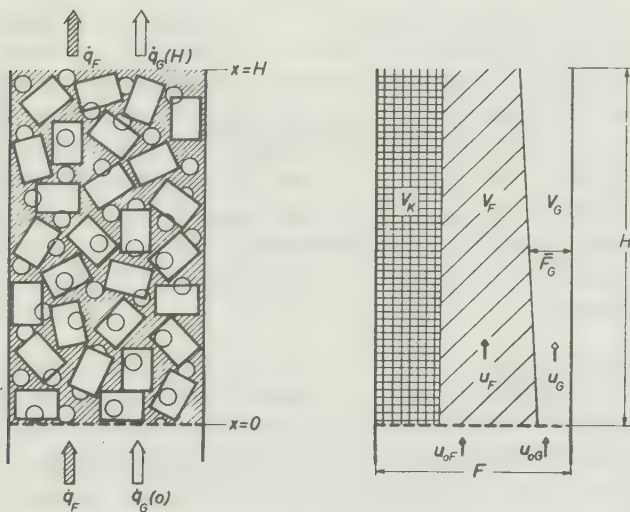


Abb.7: Modellvorstellung zur Zweiphasenströmung durch Schütttschichten

Während Calderbank für Blasensäulen $c = 0,08$ und $q = 0,3$ angibt, ließen sich die an Aufstromkolonnen gemessenen Werte am besten durch

$$\xi_{\text{Gdyn}} = 0,0445 \cdot u_{\text{OG}}^{2/3} \quad (6)$$

beschreiben.

Die Standardabweichung aller in Abb. 8 dargestellten Meßwerte von Gleichung (6) beträgt

$$s = \sqrt{\frac{\sum (0,0445 u_{\text{OG}}^{2/3} - \xi_{\text{Gdyn,exp}})^2}{N-1}} = 0,0051$$

3.2 Der Einfluß der Schüttung und des Anströmbodens

Die in Abb. 6 dargestellten Ergebnisse zeigen, daß sich die in verschiedenen Schüttungen gefundenen Werte für ξ_{G} im wesentlichen nur um den statischen Gasvolumenanteil unterscheiden. Neben dieser durch Gl. (3) beschriebenen Abhängigkeit erkennt man jedoch in Abb. 8 auch für ξ_{Gdyn} einen, wenn auch geringeren Einfluß der Form und Oberflächenbeschaffenheit der Füllkörper. So liegt z.B. ξ_{Gdyn} bei glatten Glasfüllkörpern niedriger als bei rauen Steinzeugfüllkörpern. Zum Vergleich sind in Abb. 6 (Kurve g) auch die in Kolonnen ohne Schüttung (Blasensäulen) gemessenen Werte eingetragen. Sie zeigen einen von Aufstromkolonnen stark abweichenden Verlauf und stimmen gut mit bisher veröffentlichten Werten ^{20,26)} überein.

Als Anströmboden (Gasverteiler) wurde sowohl ein Spiralrohr mit Bohrungen von 0,6 mm $\varnothing$ als auch eine Düsenplatte (ähnlich wie in ²³⁾ beschrieben) mit Bohrungen von 0,3 mm $\varnothing$ verwendet. Der Einfluß des Gasverteilers auf das Strömungsverhalten kann hier offensichtlich vernachlässigt werden, da sich schon nach einer kurzen Anlaufstrecke eine für die jeweilige Schüttung charakteristische Strömungsform einstellt. Die Aufnahmen in Abb. 9 zeigen, daß direkt über dem Gasverteiler sehr viel kleine Blasen von fast gleicher Größe auf-

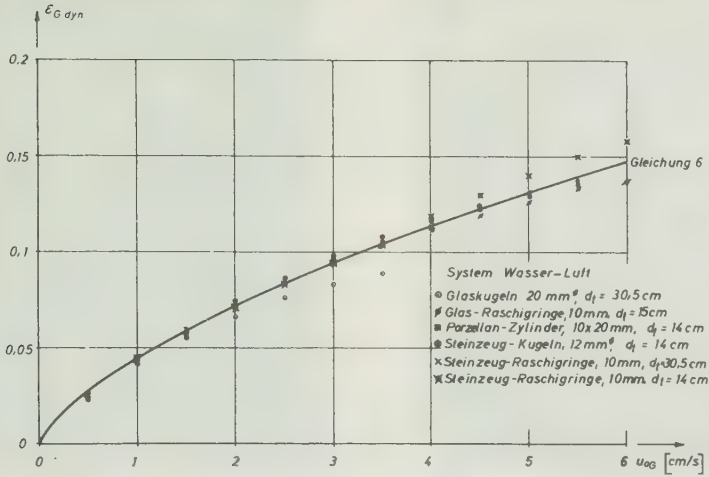


Abb.8: Korrelation des dynamischen Gasvolumenanteils

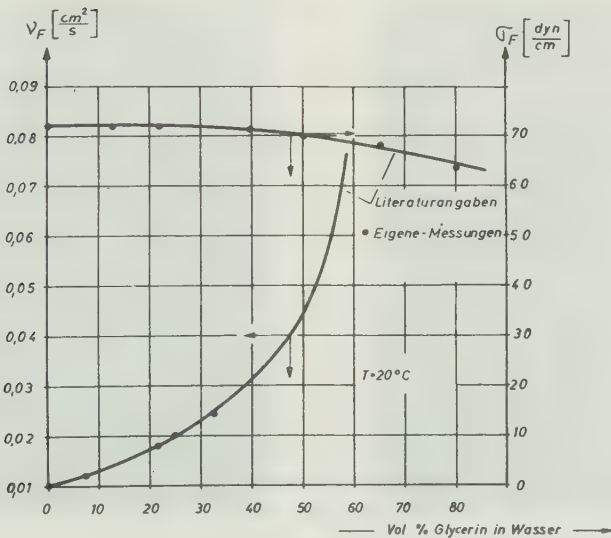
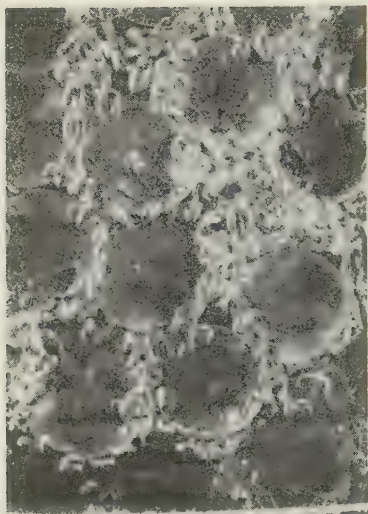
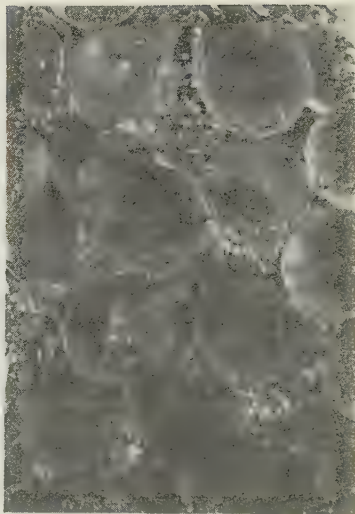


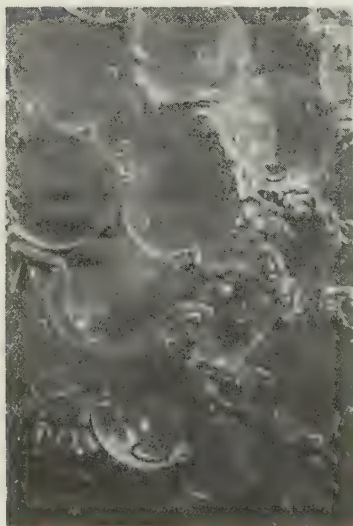
Abb.10: Oberflächenspannung und Zähigkeit von Glycerin-Wasser-Mischungen



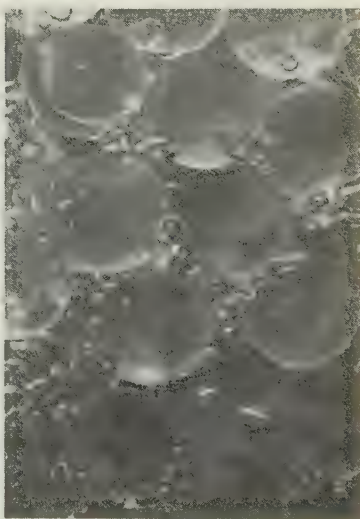
$x = 5 \text{ cm}$



$x = 40 \text{ cm}$



$x = 170 \text{ cm}$



$x = 280 \text{ cm}$

Abb.9: Blasengröße in Abhängigkeit von der Kolonnenhöhe

steigen. Durch Koaleszenz und Neuzerteilung stellt sich jedoch schon nach einer kurzen, je nach Schüttungsart zwischen ein und zwei Kolonnendurchmessern liegenden Anlaufstrecke eine sehr breite Blasengrößenverteilung ein, die dann über die ganze Höhe der Kolonne konstant bleibt. Ein Unterschied zwischen Düsenboden und Spiralrohr wurde nicht festgestellt (s. auch Abb. 19).

3.3 Der Einfluß von Zähigkeit und Oberflächenspannung der Flüssigkeit

Über die Aufstiegsgeschwindigkeit und Blasengröße der Gasphase hängt der Gasvolumenanteil auch von den physikalischen Eigenschaften der flüssigen Phase ab. Für den Blasendurchmesser frei aufsteigender Einzelblasen gilt in erster Näherung nach ⁷⁾

$$d_B = \sqrt[3]{\frac{6 \cdot \sigma_F \cdot d_{\text{Düse}}}{g \cdot (\rho_F - \rho_G)}}$$

und für deren Aufstiegsgeschwindigkeit nach Stokes

$$u_G = (\rho_F - \rho_G) \frac{g d_B^2}{18 \eta_F}$$

Der Gasvolumenanteil wird also neben der nur in engen Grenzen veränderbaren Dichtedifferenz $(\rho_F - \rho_G)$ im wesentlichen durch die Oberflächenspannung σ_F und die Zähigkeit η_F beeinflusst. Die Möglichkeiten, eine dieser beiden Größen zu variieren, ohne daß die andere sich ändert, wurden bereits in ⁴⁾ diskutiert. Eigene Messungen zeigten, daß zwar die Variation der Zähigkeit der Flüssigkeit durch Glycerinzusatz bei annähernd konstanter Oberflächenspannung gelingt (s. Abb. 10), daß jedoch jedes oberflächenaktive Mittel, das σ_F verändert, ohne η_F zu ändern, schon nach kurzer Zeit ausgeschäumt wird. Die im Hinblick auf die industrielle Anwendung der Aufstromkolonne naheliegende Verwendung von Kohlenwasserstoffen als flüssige Phase (mit

anderen ν_F - und σ_F -Werten) war im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich, so daß hier lediglich die Zähigkeit der Flüssigkeit variiert wurde. Durch Zusatz von Glycerin (DAB 6) wurden Zähigkeiten von $\nu_F = 0,014$ und $0,018 \text{ cm}^2/\text{s}$ eingestellt. In Abb. 11 ist der Gasvolumenanteil, der in einer Raschigring-schüttung für $\nu_F = 0,01 \text{ cm}^2/\text{s}$ (Wasser), $\nu_F = 0,014 \text{ cm}^2/\text{s}$ und $0,018 \text{ cm}^2/\text{s}$ gemessen wurde, über u_{oG} aufgetragen (Kurven a, b und c). Aufgrund der auch optisch zu beobachtenden langsameren Aufstiegsgeschwindigkeit der Gasblasen findet man eine deutliche Zunahme des Gasvolumenanteils mit wachsender Zähigkeit.

Da sich die höhere Zähigkeit annähernd durch eine Parallelverschiebung der Kurven auswirkt, kann der Einfluß von ν_F durch ein additives Glied zum Gasvolumenanteil berücksichtigt werden:

$$\epsilon_G = \epsilon_{G\text{stat}} + \underbrace{\epsilon_{G\text{dyn}}}_{\text{Zähigkeit}} + f(\nu_F)$$

Gl.(6) (System Wasser-Luft)

Die Auftragung der mittleren Abweichung $\Delta\epsilon_G = \epsilon_{G(F)} - \epsilon_{G(W)}$ über der Zähigkeit ergab:

$$f(\nu_F) = 0,11(\nu_F/\nu_W - 1)^{5/4} \quad (7)$$

Ähnliche Untersuchungen an Blasensäulen ⁹⁾ führten auf folgende Beziehung für den Gasvolumenanteil:

$$\epsilon_G \sim K \cdot u_{oG}^{3/4} \cdot \eta^{1/4}$$

Das bedeutet, daß in Blasensäulen (vor allem bei den in ⁹⁾ verwendeten Kolonnen mit sehr großem d_t/H -Verhältnis) ein geringerer Einfluß der Zähigkeit beobachtet wird. Dies liegt offensichtlich daran, daß der Zirkulationsströmung der Flüssigkeit, die durch die aufsteigenden Gasblasen verursacht wird, in Blasensäulen auch bei höherer Zähigkeit weniger Widerstand entgegengesetzt wird als in Füllkörperkolonnen.

Bei Verwendung von nur technisch reinem Glycerin fiel die Oberflächenspannung, wahrscheinlich aufgrund von oberflächen-

aktiven Verunreinigungen, auf 52 dyn/cm. Diese Erniedrigung von σ_F bewirkte eine starke Verkleinerung der Gasblasen und damit einen fast doppelt so hohen Gasvolumenanteil (s. Kurve d) gegenüber den Werten mit $\nu_F = 0,018 \frac{\text{cm}^2}{\text{s}}$ und $\sigma_F = 72 \text{ dyn/cm}$. Eine Zunahme von ξ_G mit fallender Oberflächenspannung wurde auch in Blasensäulen nachgewiesen. So fand z.B. v. Dierendonck et al.⁹⁾:

$$\xi_G \sim (1/\sigma_F)^{0,375}$$

und Hughmark²⁷⁾:

$$\xi_G \sim (\sigma_W/\sigma_F)^{0,26}$$

Da hier nur die Meßreihe mit $\sigma_F = 52 \text{ dyn/cm}$ zur Verfügung stand, konnte lediglich in Analogie zu der z.B. von Hughmark angegebenen Form eine Beziehung errechnet werden. Besteht keine Wechselwirkung zwischen ν_F und σ_F , dann gilt hier

$$\xi_G = \xi_{G(W)} \cdot (\sigma_W/\sigma_F)^{1,8} \quad (8)$$

Diese Beziehung beschreibt den Unterschied zwischen den Meßreihen c und d recht gut (s. Abb. 11). Sie zeigt, daß auch der Einfluß der Oberflächenspannung in Aufstromkolonnen aufgrund des hier vorliegenden Dreiphasensystems stärker ist als in Blasensäulen.

3.4 Der Einfluß der Flüssigkeitgeschwindigkeit

Steigen die Gasblasen nicht in ruhender, sondern in einer strömenden Flüssigphase auf, so gilt für die effektive Gasaufstiegsgeschwindigkeit

$$u_G = u_{Grel} \pm u_F \quad (9)$$

wobei u_{Grel} die Relativgeschwindigkeit zwischen der gasförmigen und flüssigen Phase bedeutet und das positive Zeichen für

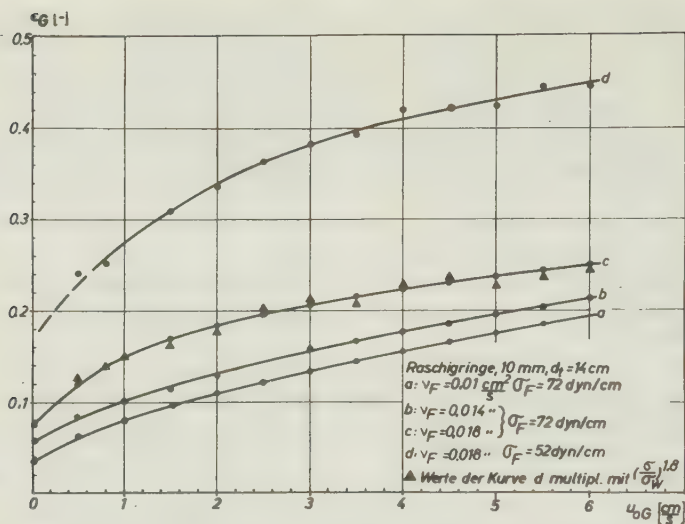


Abb.11: Einfluß von Oberflächenspannung und Zähigkeit der flüssigen Phase auf den Gasvolumenanteil

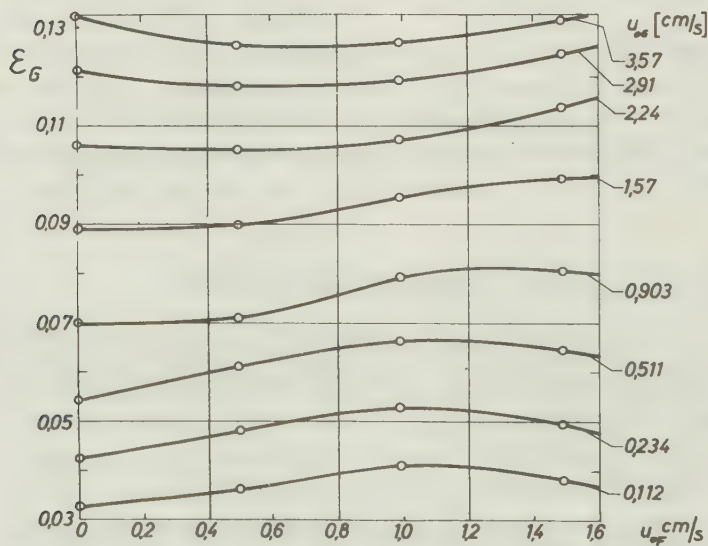


Abb.12: Einfluß der Flüssigkeitgeschwindigkeit auf den Gasvolumenanteil in einer Raschigringschüttung

Gleichstrom, das negative für Gegenstrom gilt.

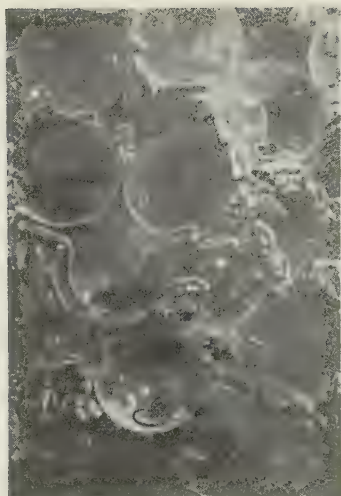
Schreibt man für $u_F = \frac{\dot{q}_F}{\epsilon_F \cdot F} = \frac{u_{oF}}{\epsilon_F}$ und setzt (9) in die Beziehung für den Gasvolumenanteil (5) ein, so erhält man für die Aufstromkolonne:

$$\epsilon_{Gdyn} = \frac{p(H)}{p} \cdot \frac{u_{oG}}{u_{Grel} + u_{oF} \sqrt{\epsilon_F}} \quad (10)$$

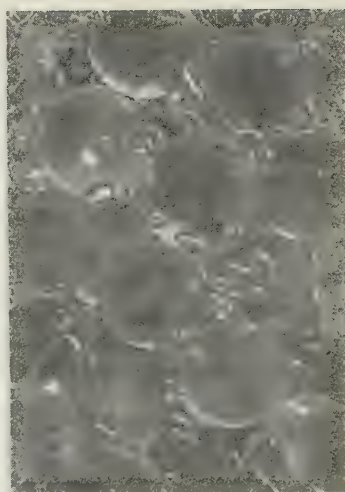
Aus dieser Beziehung würde man eine Abnahme des Gasvolumenanteils mit zunehmendem Flüssigkeitsdurchsatz vermuten, wie dies z.B. von Diboun et al.¹⁰⁾ bei Blasensäulen gefunden wurde.

Eigene Messungen zeigten jedoch, daß sich infolge der vorhandenen Schüttung ein anderes Verhalten einstellt. Zur Messung von ϵ_G als Funktion der Flüssigkeitgeschwindigkeit wurde an der Kolonne A (Steinzeug-Raschigringe, 10 mm) das Durchstrahlungsverfahren, an der Kolonne C (Glas-Raschigringe, 11,5 mm) das Umlaufverfahren angewendet. Die in Abb. 12 dargestellten Meßergebnisse (Kolonne A) für verschiedene Gas- und Flüssigkeitgeschwindigkeiten zeigen einen Verlauf, der sich durch Gleichung (10) nicht beschreiben läßt, der aber nach Beobachtung des Strömungsverhaltens erklärt werden kann. Während sich in ruhender Flüssigkeit eine je nach Gasdurchsatz konstante mittlere Blasengröße einstellt, nimmt sie mit zunehmender Flüssigkeitgeschwindigkeit bei konstantem Gasdurchsatz stark ab. Dies ist am Beispiel der Glaskugelschüttung in Abb. 13 dargestellt.

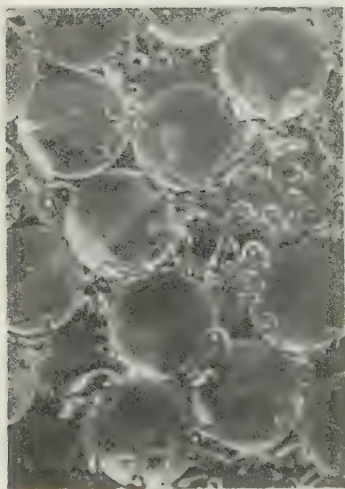
Die zusätzliche Strömung der flüssigen Phase unterdrückt die Koaleszenz der kleinen Blasen auch bei höheren Gasdurchsätzen und bewirkt damit eine Abnahme der relativen Gasauftiegeschwindigkeit. Wenn man mit Gleichung (10) die Meßwerte interpretiert, sieht man, daß je nach Höhe des Gasdurchsatzes entweder der Einfluß der zunehmenden Flüssigkeitgeschwindigkeit u_{oF} und der damit gekoppelten Erhöhung von p oder der Einfluß der abnehmenden Relativgeschwindigkeit u_{Grel} auf den Gasvolumenanteil überwiegt. Die Meßergebnisse an der Kolonne C



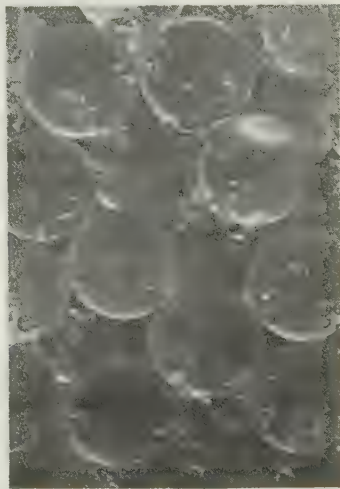
$$u_{OF} = 0$$



$$u_{OF} = 0,5 \text{ cm/s}$$



$$u_{OF} = 1,5 \text{ cm/s}$$



$$u_{OF} = 2,5 \text{ cm/s}$$

Abb.13: Änderung der Blasengröße bei strömender flüssiger Phase (Glaskugelschüttung, $d_p = 2 \text{ cm}$, $u_{OG} = 2 \text{ cm/s}$)

(s. Abb. 14) zeigen in dem der Abb. 12 entsprechenden eingezeichneten Bereich einen ähnlichen Verlauf. Erst ab einer Geschwindigkeit von $u_{oF} \approx 2 \text{ cm/s}$ überwiegt schließlich der Einfluß von u_F und dem damit höheren Gesamtdruck für alle Gasdurchsätze.

Eine Folge des geschilderten Verhaltens ist es, daß man bei der Annahme eines von u_{oF} unabhängigen Gasvolumenanteils zumindest in dem untersuchten Bereich nur einen Fehler von maximal 10% in Kauf nehmen muß.

Obwohl im Gegenstrombetrieb aufgrund des negativen Vorzeichens von u_{oF} in Gleichung (10) beide oben genannten Effekte eine Vergrößerung des Gasvolumenanteils mit u_{oF} hervorrufen müßten, wurde von Carlton et al.⁸⁾, Hoogendorn und Lips¹¹⁾ und Kunugita et al.¹²⁾ übereinstimmend ein von u_{oF} unabhängiger Gasvolumenanteil gefunden- wahrscheinlich aufgrund der sehr niedrigen Flüssigkeitgeschwindigkeiten von 0,5-1 cm/s. In Blasensäulen dagegen fand Langemann²⁸⁾ eine deutliche Zunahme des Gasvolumenanteils mit wachsendem u_{oF} im Gegenstrom- und eine geringe Abnahme mit u_{oF} im Gleichstrombetrieb.

3.5 Der Einfluß der Kolonnenhöhe

Für die Auslegung von Aufstromkolonnen ist in bestimmten Fällen die Höhenabhängigkeit des Gasvolumenanteils von Interesse. Bei Vernachlässigung des Druckverlustes und bei Annahme eines idealen Gases kann man die Volumenzunahme abschätzen:

$$p(H) \cdot V_G(H) = (p(H) + \gamma^* \cdot H) V_G(0)$$

$$\frac{V_G(H)}{V_G(0)} = 1 + \frac{\gamma^* \cdot H}{p(H)} \quad (11)$$

Bei Annahme einer 3 m hohen Kolonne mit einer mittleren Dichte von $\gamma^* = 0,9 \text{ p/cm}^3$ und bei einem Kopfdruk von 1 kp/cm^2 nimmt danach das Gasvolumen von unten nach oben um 27% zu.

Glas-Raschigring $d_p = 1 \text{ cm}$, $d_i = 15 \text{ cm}$
System Wasser - Luft

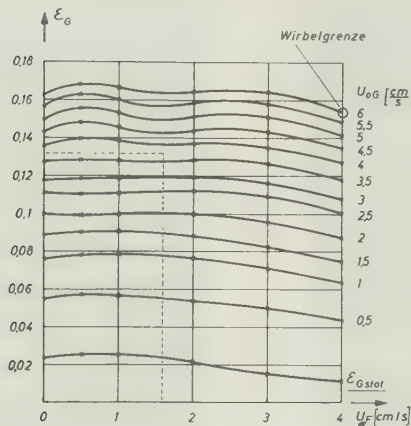


Abb. 14: Einfluß der Flüssigkeitgeschwindigkeit auf den Gasvolumenanteil (Raschigringe, Kolonne C)

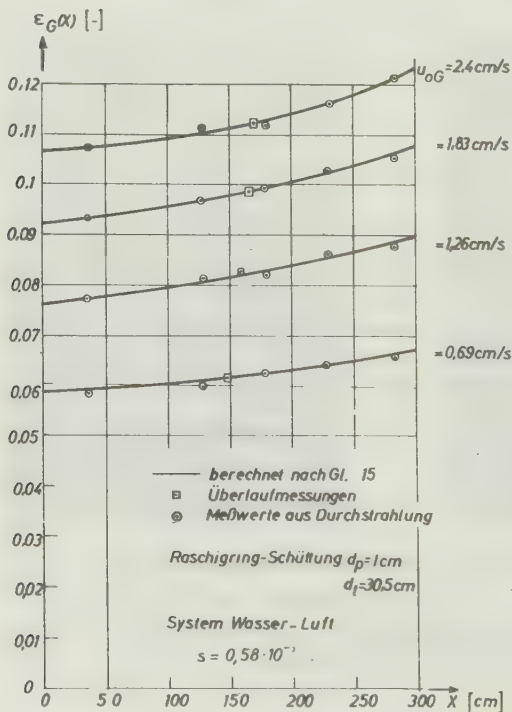


Abb. 15: Gasvolumenanteil als Funktion der Kolonnenhöhe

Wie die Beobachtung und die quantitative Auswertung von photographischen Aufnahmen in verschiedenen Höhen der Kolonne (s. Abb. 9) zeigt, äußert sich diese Volumenzunahme nicht in einer Vergrößerung, sondern in einer Zunahme der Zahl der Gasblasen. Die nach einer kurzen Anlaufstrecke über die Höhe konstante Blasengröße erklärt sich daraus, daß durch die Schüttung eine ständige Neuverteilung der Gasphase entsprechend den freien Strömungsquerschnitten erzwungen wird. Als Konsequenz ergibt sich daraus, daß die spezifische Phasengrenzfläche proportional der Volumenzunahme von unten nach oben wächst^{*)}.

Mit Hilfe des in Kapitel II, 1.4 beschriebenen Durchstrahlungsverfahrens ließ sich die Höhenabhängigkeit des Gasvolumenanteils experimentell bestimmen. Aus der Darstellung des in verschiedenen Höhen der Kolonne gemessenen Gasvolumenanteils für verschiedene Gasdurchsätze (s. Abb. 15) kann man eine mittlere effektive Volumenzunahme von 16% ablesen, d.h. 11% weniger, als oben ohne Berücksichtigung des Druckverlustes angenommen wurde.

Der gekrümmte Kurvenverlauf ergibt sich aus der nichtlinearen Verknüpfung von Gasgehalt und Höhe über Druck und Dichte der Mischphase.

Für eine mathematische Beschreibung der Höhenabhängigkeit des Gasvolumenanteils steht zunächst die Kontinuitätsgleichung für die Gasphase (Gl. 5) zur Verfügung. Setzt man darin anstelle der gemittelten jeweils die örtlichen Größen ein, so wird

$$p(x) \cdot \epsilon_{\text{Gdyn}}(x) = p(H) \cdot \frac{u_{\text{OG}}}{u_{\text{G}}} \quad (12)$$

Als zweite notwendige Beziehung benötigt man eine Gleichung über den Druckverlauf in der Kolonne, die in Kapitel III

*) Dieser Vergrößerung wird eine Verkleinerung der verfügbaren Phasengrenzfläche beim Verbrauch der Gasphase durch eine chemische Reaktion oder einen Stoffaustauschvorgang überlagert. Bei dem hier beschriebenen Gleichstromverfahren sind beide Effekte gegenläufig und kompensieren sich damit zumindest zum Teil.

hergeleitet wird. Für den Fall ruhender Flüssigkeit folgt aus der Impulsbilanz (Gl.(24))

$$-\frac{dp(x)}{dx} = \gamma_F - \gamma_F \cdot \frac{p(H)}{\epsilon - \epsilon_{\text{Gstat}}} \cdot \frac{u_{\text{OG}}}{u_G} \cdot \frac{1}{p(x)} + \alpha \cdot \gamma_G(H) \cdot \frac{u_{\text{OG}}}{u_G} \quad (13)$$

Aus Gleichung (12) folgt durch Differentiation:

$$\frac{dp(x)}{dx} = - \frac{p(H)}{\epsilon_{\text{Gdyn}}^2(x)} \cdot \frac{u_{\text{OG}}}{u_G} \cdot \frac{d\epsilon_{\text{Gdyn}}(x)}{dx}$$

Setzt man $dp(x)/dx$ in Gl.(13) ein, so wird:

$$\underbrace{p(H) \cdot \frac{u_{\text{OG}}}{u_G}}_a \cdot \frac{d\epsilon_{\text{Gdyn}}(x)}{dx} + \underbrace{\frac{\gamma_F}{\epsilon - \epsilon_{\text{Gstat}}} \cdot \epsilon_{\text{Gdyn}}^3(x)}_b - \underbrace{\left(\gamma_F + \alpha \cdot \gamma_G(H) \frac{u_{\text{OG}}}{u_G} \right) \cdot \epsilon_{\text{Gdyn}}^2(x)}_c = 0$$

Die Lösung dieser Differentialgleichung mit den konstanten Koeffizienten a, b und c ist nur in impliziter Form für $\epsilon_{\text{Gdyn}}(x)$ möglich:

$$-\frac{a}{c \cdot \epsilon_{\text{Gdyn}}(x)} - \frac{ab}{c^2} \ln \left(\frac{c - b \cdot \epsilon_{\text{Gdyn}}(x)}{\epsilon_{\text{Gdyn}}(x)} \right) = x + k$$

Die Integrationskonstante k läßt sich aus der Randbedingung:

$$x = H: \quad p = p(H), \quad \epsilon_{\text{Gdyn}}(H) = \frac{u_{\text{OG}}}{u_G}$$

bestimmen.

Damit erhält man für die Höhenabhängigkeit des dynamischen Gasvolumenanteils:

$$\ln \left(\frac{c/\epsilon_{\text{Gdyn}}(x) - b}{c \cdot u_G/u_{\text{OG}} - b} \right) = \frac{c^2}{ab(H-x)} - \frac{c}{b} \left(\frac{1}{\epsilon_{\text{Gdyn}}(x)} - \frac{u_G}{u_{\text{OG}}} \right) \quad (14)$$

Da sich der statische Gasvolumenanteil kaum mit der Höhe ändert (s. Abb. 2a), wird durch Gl. (14) auch die Abhängigkeit des gesamten Gasvolumenanteils $\varepsilon_G(x) = \varepsilon_{Gdyn}(x) + \varepsilon_{Gstat}$ von der Höhe beschrieben. Um diese graphisch darzustellen, wurde Gl. (14) nach x aufgelöst:

$$x = H - \frac{ab}{c^2} \ln\left(\frac{c/\varepsilon_{Gdyn}(x)}{c \cdot u_G/u_{OG} - b}\right) - \frac{a}{c} \left(\frac{1}{\varepsilon_{Gdyn}(x)} - \frac{u_G}{u_{OG}} \right) \quad (15)$$

Damit kann man nach Einsetzen der je nach Gasdurchsatz unterschiedlichen Konstanten a , b , c und u_G/u_{OG} , die in den folgenden Kapiteln noch erläutert werden, für vorgegebene $\varepsilon_{Gdyn}(x)$ die dazugehörenden Höhen x berechnen. Die daraus resultierenden Kurven wurden in Abb. 15 eingezeichnet.

Es zeigt sich eine recht gute Übereinstimmung ($s = 0,58 \cdot 10^{-3}$) der gemessenen mit den berechneten Werten für die Höhenabhängigkeit des Gasvolumenanteils.

Ein Vergleich der hier gefundenen Abhängigkeit mit Werten anderer Autoren, die ähnliche Systeme untersucht haben, war nicht möglich, da in keiner der zugänglichen Arbeiten quantitative Angaben über die Höhenabhängigkeit gemacht werden. Lediglich für Blasensäulen wurden von Langemann¹³⁾ über die Reaktorhöhe gemessene Gasvolumenanteile angegeben (s. Abb. 16). Ein Vergleich von Abb. 15 und 16 zeigt, daß die in Blasensäulen gefundene relativ große Blasenzerfallszone in Schütt-schichten nicht auftritt bzw. auf wenige Zentimeter reduziert ist.

Faßt man die in Kapitel II.2 und II.3 beschriebenen Effekte zusammen, so erhält man für den untersuchten Bereich folgende Beziehung für den Gasvolumenanteil in Aufstromkolonnen:

$$\varepsilon_G = 0,01 \left\{ 8\varepsilon/d_p + 1,2 \cdot 10^{-2} d_t + 11 \left(\frac{v_F}{v_W} - 1 \right)^{5/4} - 2 + 4,45 u_{OG} \right\} \left(\frac{\varepsilon_W}{\varepsilon_F} \right)^{2/3} \frac{1,8}{\varepsilon_F} \quad (16)$$

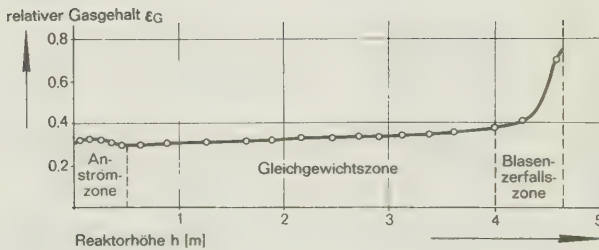


Abb. 16: Gasvolumenanteil in Blasensäulen in Abhängigkeit von der Kolonnenhöhe¹³⁾

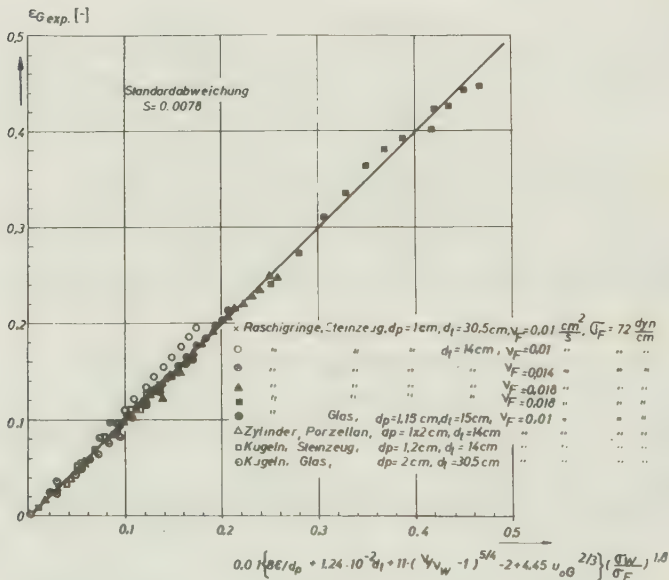


Abb. 17: Korrelation des Gasvolumenanteils

In Abb. 17 sind alle Meßwerte, die ihrerseits wieder Mittelwerte von je zwei bis vier Versuchsreihen darstellen, zusammen mit Gleichung (16) aufgetragen. Die Standardabweichung der 96 gemessenen von den nach Gl. (16) berechneten Werten beträgt:

$$s = \sqrt{\frac{\sum (\epsilon_{G\text{exp}} - \epsilon_{G\text{ger}})^2}{N-1}} = 0,0078$$

4. Mittlere Blasengröße und spezifische Phasengrenzfläche

Bei Kenntnis des mittleren Blasendurchmessers d_B und des Gasvolumenanteils ϵ_G kann man die spezifische auf den freien Zwischenraum bezogene Phasengrenzfläche a , die für die Berechnung des Stofftransports bekannt sein muß, berechnen:

Die Gesamtaustauschfläche ist $A = n_B \cdot \pi d_B^2$

mit $n_B = \frac{V_G}{V_B} = \frac{\epsilon_G \cdot V}{V_B}$

wird $A = \frac{6 \cdot \epsilon_G \cdot V}{d_B}$

und $a = \frac{A}{\epsilon \cdot V} = \frac{6 \epsilon_G}{\epsilon \cdot d_B} \quad (17)$

Da jedoch die experimentelle Bestimmung der mittleren Blasengröße innerhalb einer Schüttung nicht möglich ist (auch bei Verwendung transparenter Kolonnen mit Flüssigkeiten von $n_{DF} = n_{DGlas}$ stört bei photographischen Aufnahmen die bei strömender Gasphase auftretende Lichtstreuung an der Phasengrenzfläche), wird in solchen Systemen die spezifische Oberfläche der Gasphase meist durch Messung des Umsatzes bei bekannter chemischer Reaktion ermittelt (s. z.B. ¹⁷⁾).

Diese Bestimmungsmethode wird im Rahmen einer weiterführenden Arbeit angewendet, die sich mit den Auswirkungen der hydrodynamisch bedingten Faktoren auf den Umsatz in Aufstromkolonnen beschäftigt³⁶⁾.

Mit Hilfe photographischer Aufnahmen an Glaskolonnen kann man aber die Größenordnung des mittleren Blasendurchmessers und der Blasengrößenverteilung abschätzen, obwohl man damit nur die unmittelbar in Wandnähe liegende Zone erfaßt.

Die Auswertung einer Reihe von Aufnahmen bei verschiedenen Gasdurchsätzen ergab die in Abb. 18 dargestellten Verteilungen mit mittleren Blasendurchmessern^{*)} von 4.2, 3.49 und 4.47 mm bei $u_{OG} = 0.5, 2.0$ und 3.5 cm/s. Ähnliche Verteilungen mit einer Zunahme des mittleren Blasendurchmessers bei wachsendem Gasdurchsatz fand Siemes³⁴⁾ in Blasensäulen.

Die mittlere Blasengröße durchläuft offensichtlich ein Minimum in einem Übergangsbereich, in dem aufgrund der höheren Turbulenz neben einigen schon sehr großen Blasen eine große Zahl sehr kleiner Blasen auftritt. Bei noch höheren Gasdurchsätzen verschiebt sich dann der Mittelwert der Verteilung eindeutig in Richtung größerer Blasen, wie auch aus den Aufnahmen in Abb. 19 hervorgeht.

Überträgt man die an der Kolonnenwand gemessenen Werte auf die gesamte Schüttung, so erhält man nach Gl. (17) für die Glaskugelschüttung bei $u_{OF}=0$

$$a = 81,5 \text{ m}^2/\text{m}^3 \quad (u_{OG} = 0,5 \text{ cm/s})$$

$$a = 286 \text{ m}^2/\text{m}^3 \quad (u_{OG} = 2,0 \text{ cm/s})$$

$$a = 300 \text{ m}^2/\text{m}^3 \quad (u_{OG} = 3,5 \text{ cm/s})$$

*) Als mittlerer Blasendurchmesser wird der Durchmesser einer volumengleichen Kugel gewählt. Bei Approximation der Blasen durch Rotationsellipsoide (große Achse d_1 , kleine Achse d_2) wird $d_B = \sqrt[3]{d_1 d_2^2}$.

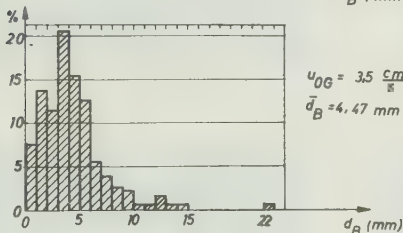
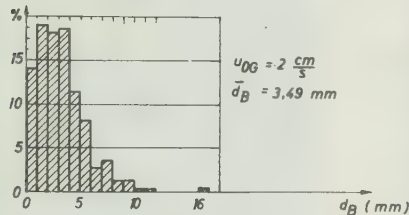
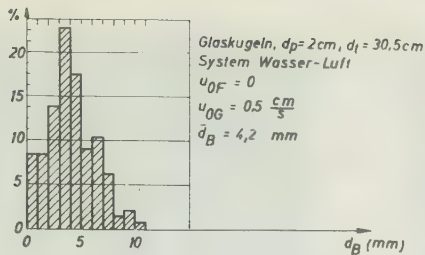


Abb.18: Blasengrößenverteilungen in einer Kugelschüttung

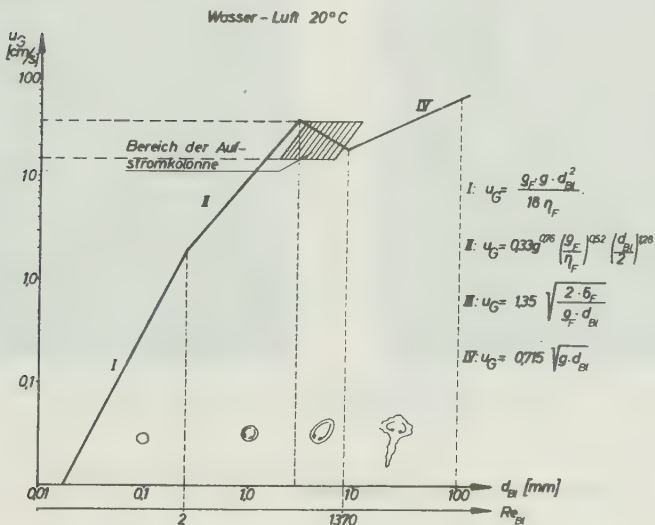
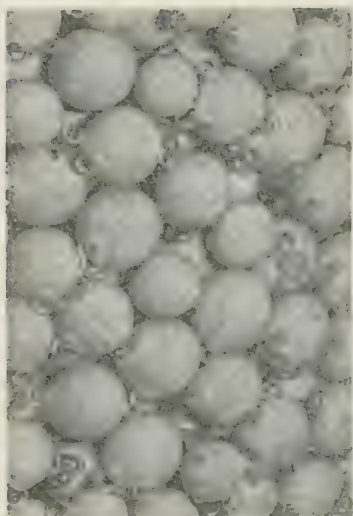
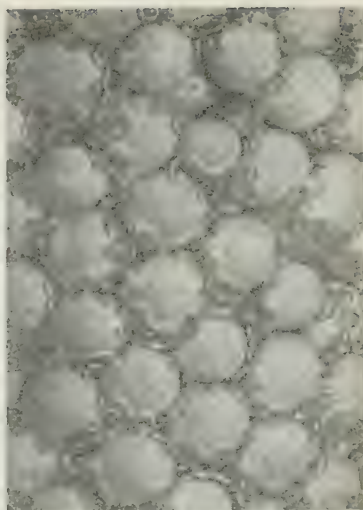


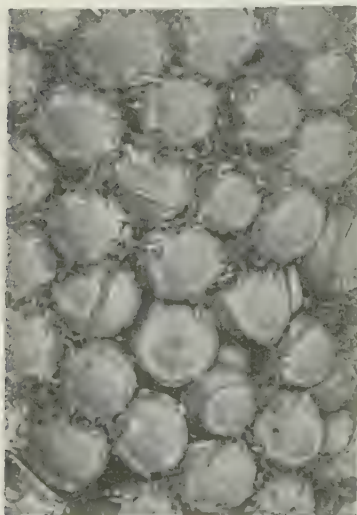
Abb.20: Aufstiegsgeschwindigkeit von Einzelblasen



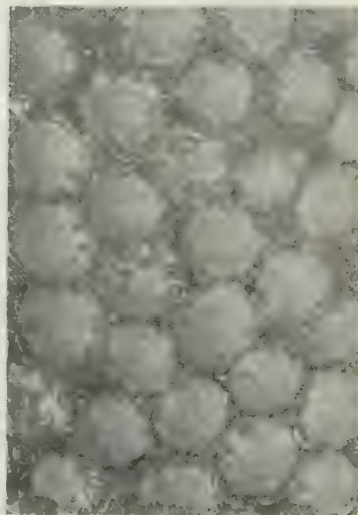
$$u_{OG} = 0,4 \text{ cm/s}, u_{OF} = 0$$



$$u_{OG} = 1,4 \text{ cm/s}, u_{OF} = 0$$



$$u_{OG} = 4,4 \text{ cm/s}, u_{OF} = 0$$



$$u_{OG} = 4,4 \text{ cm/s}, u_{OF} = 3,6 \text{ cm/s}$$

Abb.19: Blasengröße in Abhängigkeit vom Gasdurchsatz

Dieser steile Anstieg der spezifischen Oberfläche mit zunehmendem Gasdurchsatz und der sich anschließende Sättigungsbereich wurde z.B. auch von Reith¹⁷⁾ an Blasensäulen und von Carleton et al.²⁴⁾ in Gegenstromkolonnen gemessen.

5. Strömungsform und Aufstiegsgeschwindigkeit der Gasphase

Die effektive Geschwindigkeit, mit der die Gasblasen in einer flüssigkeitserfüllten Schüttung aufsteigen, hängt im wesentlichen von der Art der Schüttung, den physikalischen Eigenschaften der Flüssigkeit und von dem jeweiligen Gas- und Flüssigkeitsdurchsatz ab. Einen ersten Anhalt für die Größenordnung der Gasgeschwindigkeit erhält man aus den zahlreichen Messungen für die Aufstiegsgeschwindigkeit von Einzelblasen in Flüssigkeiten ohne Einbauten, die von Grassmann⁷⁾ mit den entsprechenden Gleichungen für die verschiedenen Bereiche zusammengestellt wurden (s. Abb. 20). Für Blasenschwärme findet man aufgrund der Wechselwirkung zwischen Koaleszenz und Neuverteilung sowie wegen der gegenseitigen Behinderung der Blasen andere Aufstiegsgeschwindigkeiten. Von Towell et al.¹⁴⁾ wird für eine Blasensäule von 40 cm Durchmesser folgende Beziehung angegeben:

$$u_G = 2u_{OG} + u_e \quad (u_F=0)$$

Diese Abhängigkeit, in der u_e die Aufstiegsgeschwindigkeit von Einzelblasen bedeutet, wurde von Reith¹⁵⁾ auch für andere Kolonnendurchmesser und -höhen gefunden. Für "slugflow", d.h. eine Strömungsform, bei der die Gasphase bei höheren Durchsätzen nicht mehr in einzelnen, annähernd runden Blasen, sondern in Form von Gasschläuchen aufsteigt, fand Nicklin¹⁶⁾ folgende Beziehung:

$$u_G = \frac{0,2}{\epsilon_F} (u_{OG} + u_{OF}) + \frac{0,35}{\epsilon_F} \sqrt{g \cdot d_t}$$

Diese, vor allem für Kolonnen kleineren Durchmessers geltende Abhängigkeit wurde ebenfalls von Reith in einer Blasensäule von 5 cm Durchmesser gefunden.

Schließlich wurde von van Dierendonck et al.⁹⁾ für den Gasgehalt in Blasensäulen mit einem Verhältnis von $H/d_t = 1,5 \div 2$ die in 3.3 zitierte Gleichung angegeben, die sich mit $u_G \approx u_{oG}/\xi_G$ umrechnen läßt in:

$$u_G = 0,83 \cdot u_{oG}^{0,25} \left(\frac{\sigma_F^3}{\eta_F^2 \rho_F} \right)^{1/8}$$

Für den hier untersuchten Apparatetyp waren lediglich im Gegenstrombetrieb gemessene Werte von u_G zugänglich^{11,12)}. Die Messungen von Hoogendorn et al.¹¹⁾ (Raschigringe 13 mm, $d_t = 40,5$ cm) lassen sich in etwa durch die Beziehung $u_G \approx 18 \cdot u_{oG}^{1/2}$ (u_{oG} [cm/s]) beschreiben. Kunugita et al.¹²⁾ (Raschigringe 10, 15 und 20 mm, $d_t = 10$ cm) geben dagegen eine lineare Beziehung $\xi_G = 7,05 \cdot 10^{-2} u_{oG}$ (u_{oG} [cm/s]) an, woraus nach seiner Berechnung ($u_G = u_{oG}/\xi_G$) eine konstante Gasaufstiegsgeschwindigkeit von $u_G = 14,2$ cm/s folgt. Offensichtlich beruhen diese Messungen jedoch auf zwei falschen Meßprinzipien, nämlich der ξ_G -Messung aus der Druckänderung ohne Berücksichtigung des Druckverlustes (s.Kap. II, 1.2) und Verweilzeitmessungen ohne Berücksichtigung der axialen Vermischung der Gasphase.

Die effektive, auf die Kolonnenwand bezogene Geschwindigkeit der im stationären Zustand durch die Kolonne strömenden Gasphase folgt aus der Kontinuitätsgleichung (4), die sich (s.Gl. (5)) umformen läßt zu:

$$u_G = \frac{p(H)}{p} \cdot \frac{u_{oG}}{\xi_{Gdyn}} \quad (18)$$

Mit

$$u_{oG} = \dot{q}_G(H)/F$$

$$\dot{q}_G = (p(H)/p) \cdot \dot{q}_G(H)$$

$$V = H \cdot F$$

$$V_{Gdyn} = \xi_{Gdyn} \cdot V$$

$$u_G = H/\tau_G$$

ergibt sich aus Gleichung (18) die in der Reaktionstechnik allgemein übliche Beziehung für die mittlere Verweilzeit

$$\tau_G = \frac{V_{Gdyn}}{\dot{q}_G} \quad (19)$$

Diese so definierte mittlere Verweilzeit des Gesamt-Gasstroms unterscheidet sich von der mittleren Aufenthaltszeit t der Einzelmoleküle, die man aus Markierungsversuchen ermitteln kann. Markiert man den Gasstrom mit einem Tracer, der in der flüssigen Phase unlöslich ist und der sich z.B. durch seine Wärmeleitfähigkeit von der Gasphase unterscheidet, so kann man nach einer Stoßmarkierung an der Stelle des Gaseintritts die Verbreiterung des Verweilzeitspektrums oberhalb der Einspritzstelle messen (s. Abb. 21). Eine Verweilzeitverteilung tritt immer dann auf, wenn keine ideale Pfropfenströmung vorliegt. In dem hier untersuchten Fall resultiert die Verbreiterung aus drei Effekten:

- 1) Die aufsteigenden Gasblasen haben keine einheitliche Größe. Aus der Blasengrößenverteilung (s. Kap. II.4) folgt eine Geschwindigkeitsverteilung, da die Aufstiegsgeschwindigkeit mit wachsendem Blasendurchmesser zunimmt. Entsprechend der unterschiedlichen Geschwindigkeiten kommt es zu unterschiedlichen Aufenthaltszeiten der Einzelblasen in der Kolonne und damit zu einer wachsenden Spreizung (Varianz) der Verweilzeitverteilungskurve.
- 2) In der Füllkörperschüttung bilden sich häufig nach oben abgeschlossene Hohlräume, in der eine Blase festgehalten werden kann ($\hat{=} \mathcal{E}_{Gstat}$). Durch Koaleszenz dieser Blase mit den nachfolgenden wächst die Blase schließlich soweit an, daß sie den Hohlraum verlassen und einer neuen kleinen Blase Platz machen kann. Dieser "Rückhalte-Effekt" bewirkt ebenfalls eine Verbreiterung des Verweilzeitspektrums, und zwar in Richtung einer zunehmenden Schiefe der Verteilungskurve.

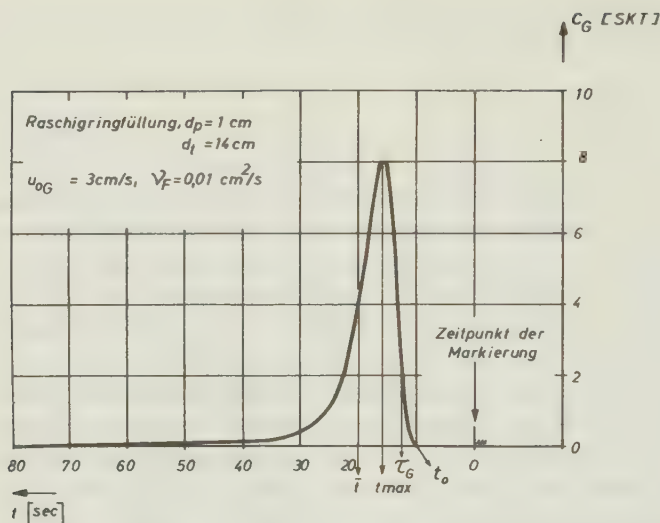


Abb.21: Verweilzeitverteilungskurve der Gasphase

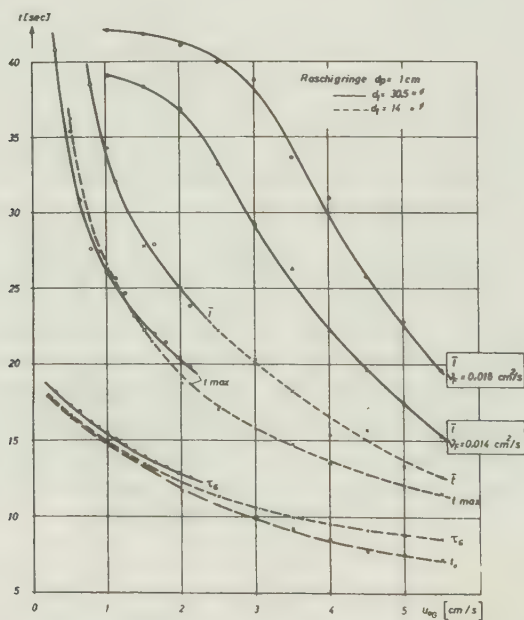


Abb.22: Verweilzeiten der Gasphase in Raschringsschüttungen

- 3) Aus der ständigen Koaleszenz und Neuverteilung der aufsteigenden Blasen (wobei letztere vor allem durch die Füllkörper erzwungen wird) folgt im Zusammenhang mit der Geschwindigkeitsverteilung eine axiale und radiale Vermischung, die sich durch eine Zunahme der Varianz des Verweilzeitspektrums bemerkbar macht. Auf diesen Effekt wird in Kapitel V noch näher eingegangen.

Die Berechnung der mittleren Aufenthaltszeit $\bar{t}$ erfolgt aus dem ersten Moment der gemessenen Antwortfunktion auf eine Stoßmarkierung am Eingang:

$$\bar{t} = \frac{\int_0^{\infty} c_G \cdot t \cdot dt}{\int_0^{\infty} c_G dt} \quad *) \quad (20)$$

In Abb. 22 sind die in Raschigringschüttungen ermittelten Zeiten $\bar{t}$ und τ_G sowie die "Durchbruchzeit" t_0 und die Laufzeit des Konzentrationsmaximums $t_{\max}$ (s. Abb. 21) über u_{OG} aufgetragen. Man erkennt neben der starken Abnahme der Aufenthaltszeiten mit wachsendem Durchsatz, daß die durch Gl. (20) definierte mittlere Aufenthaltszeit $\bar{t}$ viel größer als die des Konzentrationsmaximums und diese wiederum größer als die Durchbruchzeit ist. Die Übereinstimmung zwischen den Meßwerten an der Kolonne mit 14 bzw. 30,5 cm Durchmesser zeigt, daß hier offensichtlich der Kolonnendurchmesser ohne Einfluß ist.

Die Messungen, die mit Glycerin-Wasser-Mischungen als flüssige Phase ($V_F = 0,014$ und $0,018 \text{ cm}^2/\text{s}$) durchgeführt wurden, zeigen einmal, daß die Aufenthaltszeiten mit wachsender Zähigkeit stark zunehmen und zum anderen, daß die Blasen im Bereich kleinen Gasdurchsatzes weniger schnell koaleszieren, was sich durch verminderte Aufstiegsgeschwindigkeit und damit durch größere Aufenthaltszeiten bemerkbar macht.

*) Die Meßtechnik, die Berücksichtigung der Totzeit der Meßeinrichtung sowie die Auswertung der Kurven wird in Kap. V behandelt.

In Abb.22 ist weiterhin die durch Gleichung (19) definierte mittlere Verweilzeit

$$\tau_G = \frac{V_{Gdyn}}{\dot{q}_G} = \frac{H}{u_G}$$

aufgetragen. (Für $p(H)/p$ wurden dabei die im folgenden noch zu bestimmenden Zahlenwerte eingesetzt.) τ_G liegt nur wenig über der "Durchbruchzeit" der großen Blasen und weit unter der mittleren Aufenthaltszeit der Einzelmoleküle. Der große Unterschied folgt aus dem "Identitätsverlust" der nicht markierten "anonymen" Einzelblasen. Sobald sich z.B. aufgrund des Rückhalteeffektes eine nicht symmetrische Verweilzeitverteilungskurve ergibt, wird $\bar{t}$ als die Zeit, die die "Vergangenheit" aller Moleküle berücksichtigt, größer als die Zeit τ_G , die aus integralen Durchsatzmessungen bestimmt wird. Dementsprechend wird zur Berechnung des Umsatzes oder Austauschgrades $\bar{t}$ aus Gl.(20) und für hydrodynamische Vorgänge τ_G aus Gl.(19) bzw. $u_G = H/\tau_G$ zugrunde gelegt.

Da nun τ_G weder durch Markierungsversuche noch auf andere Weise gemessen werden kann^{*)}, muß die gesuchte Gasaufstiegsgeschwindigkeit u_G aus Gleichung (18) ermittelt werden. Dazu muß neben ϵ_{Gdyn} und u_{OG} noch das Verhältnis vom Druck am Kopf der Kolonne $p(H)$ zum mittleren Druck p bekannt sein. In Abb.23 ist der gemessene Druckverlauf über die Kolonnenhöhe am Beispiel der Glaskugelschüttung für verschiedene Gasdurchsätze dargestellt. Aufgrund der fast linearen Druckänderung kann man für p den Druck in der halben Höhe (x_m) der Kolonne einsetzen. Dieser läßt sich aus Meßwerten von den der Mitte am nächsten liegenden Meßstellen (x_2 und x_3 , vgl. Abb.23) wie folgt berechnen:

*) Die Bestimmung von τ_G für den hier vorliegenden Fall eines "closed-open vessel" (siehe z.B.¹⁸⁾) nach

$$\bar{t}/\tau_G = 1 + \frac{D_G}{u_G \cdot H}$$

ist wegen der vorhandenen stagnierenden Zonen (ϵ_{Gstat}) nur mit größerem Fehler möglich. (Die Beziehung gilt nur für Pfropfenströmung mit überlagerter Dispersion, letztere ausgedrückt durch den axialen Dispersionskoeffizienten D_{AG})

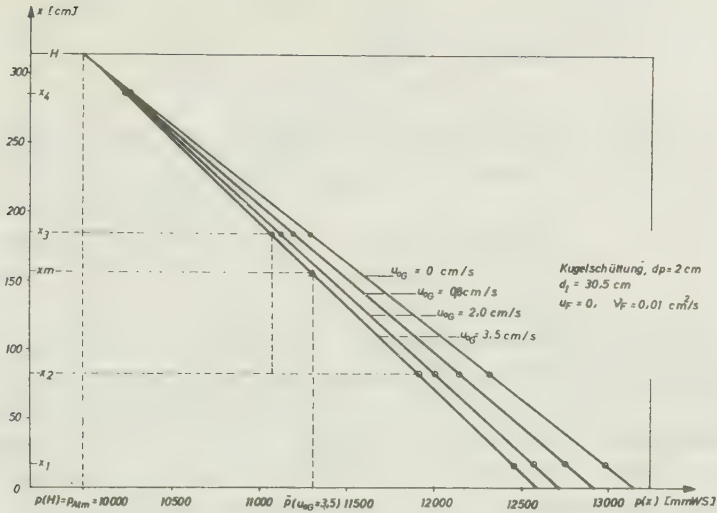


Abb.23: Druckverlauf über die Kolonnenhöhe

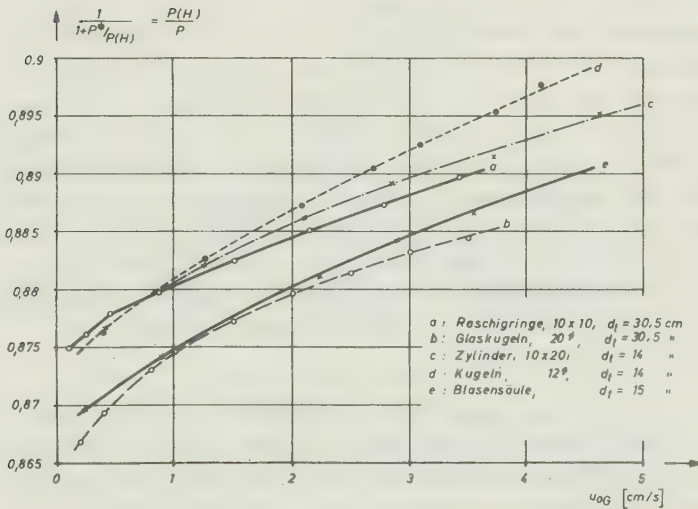


Abb.24: Druckkorrekturfaktor zur Berechnung von u_G

$$p = \underbrace{\frac{x_3 - x_m}{x_3 - x_2} (p_2' - p_3') + p_3'}_p + p(H)$$

Hierin ist p' der jeweilige Überdruck über dem Druck am Kolonnenkopf. Damit wird:

$$u_G = \frac{1}{1 + p^*/p(H)} \cdot \frac{u_{oG}}{\epsilon_{Gdyn}} \quad (21)$$

Der aufgrund der Kompressibilität der Gasphase notwendige Korrekturfaktor $1/(1 + p^*/p(H))$ wurde bei den früheren Arbeiten (1-5) nicht berücksichtigt. Die Darstellung der aus Druckmeßwerten berechneten Korrekturfaktoren (s. Abb. 24) zeigt jedoch, daß die Aufstiegsgeschwindigkeit vor allem im Bereich kleiner Gasdurchsätze (d.h. hohem Gesamtdruck) bis zu 14% niedriger ist als die Berechnung ohne Druckkorrektur ergeben würde. Dieser Effekt wird bei höheren Kolonnen natürlich noch größer.

Die aus Druck- und ϵ_G -Meßwerten nach Gl. (21) berechneten Gasgeschwindigkeiten wurden für alle untersuchten Systeme in Abb. 25 über der Gasleerraumgeschwindigkeit u_{oG} aufgetragen. Die Darstellung zeigt die je nach Schüttungsart verschieden starke Zunahme von u_G mit dem Gasdurchsatz, wobei für Wasser als flüssige Phase der Schnittpunkt aller Kurven mit der Ordinate an der Stelle $u_{oG} = 0$ (d.h. praktisch Aufstieg von wenigen Einzelblasen) bei $u_G = 15-17$ cm/sec liegt. In Flüssigkeiten mit höheren Zähigkeiten (Kurve f und g) steigt die Aufstiegsgeschwindigkeit parallel zu der in Wasser gemessenen (Kurve a) an, liegt aber insgesamt tiefer als die bei $v_F = 0,01$ cm²/s gemessene.

In der Glas-Raschigring-Kolonne, die mit einer Flüssigkeit von gleichem Brechungsindex wie Glas gefüllt war, wurde die Aufstiegsgeschwindigkeit von Einzelblasen mit Hilfe photographischer Aufnahmen ermittelt. Die aus einer Sonde in der

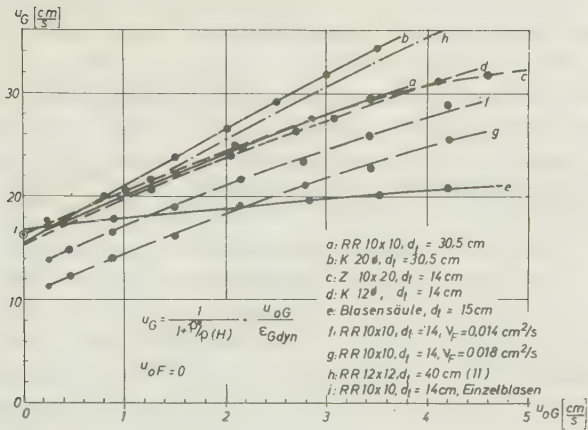


Abb.25: Effektive Aufstiegsgeschwindigkeit der Gasphase

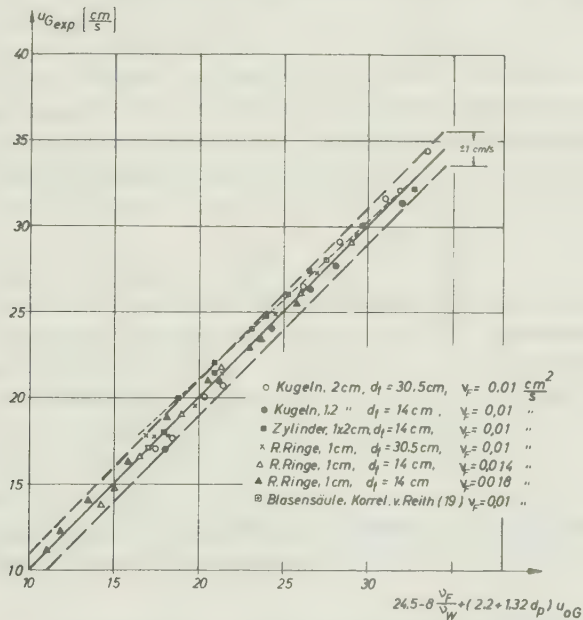


Abb.26: Korrelation der effektiven Gasgeschwindigkeit

Mitte der Schüttung austretenden Blasen wurden mit verschiedenen langen Verschußzeiten photographiert, so daß die von den Blasen zurückgelegten Wege sichtbar wurden. Die Division der in Richtung der Kolonnenachse zurückgelegten Wege durch die entsprechenden Verschußzeiten ergab eine mittlere effektive Aufstiegsgeschwindigkeit von 16,3 cm/s; dieser Wert liegt genau in dem oben genannten Bereich für $u_{oG} = 0$.

Die Zunahme der Aufstiegsgeschwindigkeit mit wachsendem Gasdurchsatz liegt daran, daß die Blasengröße, von der die Geschwindigkeit im wesentlichen abhängt, ebenfalls mit zunehmendem Durchsatz anwächst (siehe z.B. Abb.19). Dies ist vor allem auf die häufigere Koaleszenz der dichter aufeinanderfolgenden Blasen zurückzuführen. Bei hohen Blasendichten sucht sich das Gas schließlich in Form von "Schläuchen" den Weg des geringsten Widerstandes durch die Schüttung.

Um eine einfache Beziehung für u_G als Funktion von u_{oG} , d_p und V_F zu erhalten, wurden die gemessenen Kurven durch Geraden approximiert, obwohl sie exakt durch Potenzfunktionen beschrieben werden müßten. Analog zu der von Towell et al.¹⁴⁾ angegebenen Korrelation für Blasensäulen (System Wasser-Luft)

$$u_G = u_e + 2 \cdot u_{oG}$$

kann man aus dem hier gemessenen Kurvenverlauf folgende Beziehung vermuten:

$$u_G = u_e + m(d_p) \cdot u_{oG}$$

mit $u_e = A - f(V_F)$

Nach Ermittlung der Steigung m als Funktion von d_p und des Ordinatenabschnittes u_e als Funktion von V_F erhält man

$$u_G = \underbrace{(24,5 - 8 V_F / V_W)}_{u_e} + \underbrace{(2,2 + 1,32 d_p)}_{m(d_p)} u_{oG} \quad (22)$$

Es wird z.B. für Kugeln von $d_p = 1,2 \text{ cm}$ und für $\mathcal{V}_F = \mathcal{V}_W = 0,01 \text{ cm}^2/\text{s}$:

$$u_G = 16,5 + 3,78 u_{oG}$$

d.h. $u_e = 16,5 \text{ cm/s}$ gegenüber $16,3 \text{ cm/s}$ bei der photographischen Bestimmung der Aufstiegsgeschwindigkeit von Einzelblasen. In Abb.26 sind alle gemessenen Geschwindigkeiten über der angegebenen Beziehung für u_G aufgetragen.

Da die Standardabweichung aller Meßwerte (auch derjenigen, die über eine von Reith¹⁹⁾ angegebene Gleichung für Blasensäulen berechnet wurden) von Gleichung (22) lediglich $0,55 \text{ cm/sec}$ beträgt, erscheint die Annahme einer linearen Beziehung zwischen u_G und u_{oG} in dem untersuchten Bereich und die Verwendung von Gl.(22) für die folgenden Untersuchungen gerechtfertigt.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß der Gasvolumenanteil in Aufstromkolonnen als Summe des statischen (Gl.(3)) und des dynamischen Anteils (Gl.(6)) in dem untersuchten Bereich ($0 < \mathcal{E}_G < 0,45$) durch Gleichung (16)

$$\mathcal{E}_G = f(\mathcal{E}, d_p, d_t, \mathcal{V}_F, \mathcal{G}_F, u_{oG})$$

mit einer Standardabweichung von $s = 0,0078$ beschrieben werden kann. Weiterhin ist es möglich, die Höhenabhängigkeit des Gasvolumenanteils durch Gleichung (15) und die effektive Gasaufstiegsgeschwindigkeit durch Gleichung (22) in den angegebenen Bereichen mit Standardabweichungen von $0,58 \cdot 10^{-3}$ bzw. $0,55 \text{ cm/s}$ wiederzugeben.

III. Der Druckverlust der strömenden Phasen

1. Übersicht

Die Kenntnis des Druckverlustes eines kontinuierlich durchströmten Apparates ist Voraussetzung für die Auslegung der für die Umwälzung der beiden Phasen benötigten Pumpen und Gebläse. Weiterhin kann die Druckänderung über die Höhe des Reaktors bei nicht volumenbeständigen Reaktionen in die Berechnung des Umsatzes eingehen.

In der Literatur wurden sehr viele Messungen über den Druckverlust bei Zweiphasenströmung (eine und zwei Komponenten) durch horizontal oder vertikal angeordneter leere Rohre veröffentlicht, während sich die Untersuchungen von Schütt-schichten im wesentlichen auf den Fall der Rieselkolonne (verteilte flüssige Phase) beschränkten.

In einer Arbeit von Dukler et al.²⁹⁾ wurden eine Reihe von bislang bekannten Korrelationen für den Druckverlust zweiphasig durchströmter Rohre ohne Einbauten anhand von ca. 9000 Meßwerten miteinander verglichen. Dabei stellte sich heraus, daß die von Lockhart und Martinelli 1949 aufgestellte Korrelation (φ_G und φ_F als Potenzfunktion von χ)^{*)} die Daten mit der geringsten Abweichung wiedergab. Für den Druckverlust einphasig durchströmter Schütt-schichten wurde von Ergun³⁰⁾ eine empirische Korrelation angegeben, die alle im laminaren und turbulenten Bereich gemessenen Daten sehr gut beschreibt. Diese Gleichung wurde von Brauer³¹⁾ auf Schütt-schichten mit hohlen Füllkörpern (z.B. Raschigringe) erweitert. Eine Zusammenfassung von Druckverlustmeßwerten in gleichsinnig durchströmten Rieselkolonnen wird von Reiss³²⁾ gegeben. Er stellte fest, daß alle Daten durch die Gleichung von Larkins et al.³³⁾

*) Darin bedeuten:

$$\varphi_G = \sqrt{\sigma_{FG}/\sigma_G}, \quad \varphi_F = \sqrt{\sigma_{FG}/\sigma_F}, \quad \chi = \sqrt{\sigma_F/\sigma_G}$$

$$\log(\delta_{FG}/(\delta_F + \delta_G)) = 0,416/(\{\log X\}^2 + 0,666) \quad *)$$

Mit maximaler Abweichung von $\pm 30\%$ beschrieben werden können. Eisenklam et al.²³⁾ untersuchte eine zweiphasig von unten nach oben durchströmte Vorrichtung aus Glaskugeln ($d_p = 1 \text{ mm}$, $d_t = 4,45 \text{ cm}$, $H = 35,5 \text{ cm}$, $\varepsilon = 0,36$) in einem Bereich von $u_{oG} = 0,3-15 \text{ m/s}$ und $u_{oF} = 0,5-14 \text{ cm/s}$. Bei diesen hohen Gasgeschwindigkeiten sind beide Phasen zusammenhängend (gasvorströmte Kanäle, Flüssigkeitsfilme und zerdrückte Tropfen); der gemessene Druckverlust ist sehr hoch ($\Delta p/\Delta H$ bis zu $35 \text{ kp/cm}^2 \cdot \text{m}$). Die von Eisenklam angegebene Regressionsgleichung für den Druckverlust lautet

$$\delta_{FG} = \rho_F \cdot a_1 \text{Re}_F^{a_2} \cdot \text{Re}_G^{a_3} \cdot \left(\frac{\eta_F}{\eta_G}\right)^{a_4}$$

woran die Konstanten a_1 bis a_4 für hohe bzw. niedrige Gasgeschwindigkeiten verschiedene Werte annehmen.

Von Carleton et al.²⁴⁾ sind schließlich Meßwerte für den Druckverlust bei steigender Flüssigkeit und sinkender Gasphase ($u_{oG} = 0,17-17 \text{ cm/s}$) an Füllkörperkolonnen veröffentlicht worden, die sich als einzige mit den in dieser Arbeit gemessenen Werten vergleichen lassen.

*) Dies bedeutet eine Anwendung der Lockhart-Martinelli-Parameter auf Schütttschichten.

2. Die Druckänderung in ruhender Flüssigkeit

Für den Fall, daß die Gasphase die Schütttschicht bei ruhender Flüssigkeit von unten nach oben durchströmt, lautet die allgemeine Impulsbilanzgleichung:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_G \vec{u}_G = -[\nabla \rho_G \vec{u}_G \vec{u}_G] - \nabla p - [\nabla \vec{\tau}] + g(\rho_G - \rho_F) \quad *)$$

Dabei sei das der Bilanz zugrunde liegende Volumenelement $\Delta V = F \cdot \Delta x = \Delta y \cdot \Delta z \cdot \Delta x$ groß gegenüber dem Blasenvolumen V_B und klein gegenüber den Kolonnenabmessungen. Die Gasphase werde dennoch als Kontinuum mit der flüssigen bzw. festen Phase als Begrenzung angenommen.

Betrachtet man nur die eindimensionalen Änderungen in Richtung der Kolonnenachse (d.h. Druck, Geschwindigkeit und Reibungskräfte seien konstant über jeden Querschnitt), so wird:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_G u_{Gx} = - \left(\frac{\partial}{\partial x} \rho_G u_{Gx} u_{Gx} + \frac{\partial}{\partial y} \rho_G u_{Gy} u_{Gy} + \frac{\partial}{\partial z} \rho_G u_{Gz} u_{Gz} \right) - \underbrace{\left(\frac{\partial}{\partial x} \tau_{xx} + \frac{\partial}{\partial y} \tau_{yx} + \frac{\partial}{\partial z} \tau_{zx} \right)}_{\mathcal{R}} - \frac{\partial p}{\partial x} + g(\rho_G - \rho_F)$$

Die Anwendung der Kettenregel führt nach Zusammenfassung entsprechender Terme auf:

$$\begin{aligned} u_{Gx} \cdot \frac{\partial \rho_G}{\partial t} &= -u_{Gx} \left(\frac{\partial \rho_G u_{Gx}}{\partial x} + \frac{\partial \rho_G u_{Gy}}{\partial y} + \frac{\partial \rho_G u_{Gz}}{\partial z} \right) - \rho_G \left(u_{Gx} \frac{\partial u_{Gx}}{\partial x} + u_{Gy} \frac{\partial u_{Gx}}{\partial y} + u_{Gz} \frac{\partial u_{Gx}}{\partial z} \right) - \rho_G \frac{\partial u_{Gx}}{\partial t} \\ &= \underbrace{-\frac{\partial \rho_G}{\partial t} (Kontinuität)}_{= -\rho_G \cdot \frac{Du_{Gx}}{Dt}} - \mathcal{R} - \frac{\partial p}{\partial x} + g(\rho_G - \rho_F) \end{aligned}$$

$$\rho_G \cdot \frac{Du_{Gx}}{Dt} = -\mathcal{R} - \frac{\partial p}{\partial x} + g(\rho_G - \rho_F)$$

*) Zur Vereinfachung seien im folgenden bis zur Ableitung von Gl.(23) die Angaben der Ortsabhängigkeit weggelassen.

Unter Annahme stationärer Bedingungen ($\frac{\partial u_{Gx}}{\partial t} = 0$) sowie unter der Voraussetzung, daß u_{Gx} weder von x (s. Kap. II: $\frac{du_G}{dx} = 0$) noch von y oder z abhängt ($\frac{\partial u_{Gx}}{\partial y} = \frac{\partial u_{Gz}}{\partial z} = 0$), wird

$$\frac{Du_{Gx}}{Dt} = 0$$

Die durch Reibungskräfte verursachte Impulsänderung ($\cong R$) kann bei turbulenter Strömung von Gasblasen durch eine Schütttschicht nicht direkt ermittelt werden. Da die in dem Dreiphasenraum wirkenden Reibungskräfte Druckänderungen in dem betrachteten Volumenelement hervorrufen, sollen sie durch den noch zu erläuternden Druckgradienten

$$R = \frac{d}{dx} (p_{GF} - p_{GK})$$

erfaßt werden. Vernachlässigt man schließlich in dem Gravitationsterm S_G gegenüber S_F , dann wird:

$$\frac{dp}{dx} = - \frac{d}{dx} (p_{GF} - p_{GK}) - g \cdot S_F \quad (23)$$

Die durch Reibungskräfte zwischen Gas und Flüssigkeit verursachte Druckabsenkung dp_{GF}/dx sowie die durch "Reibung" (Abbremsung und Umlenkung) der Gasblasen an den Füllkörpern und der Wand hervorgerufene Druckerhöhung dp_{GK}/dx können experimentell getrennt ermittelt werden.

2.1 Reibung Gas - Flüssigkeit

Die auf eine unbeschleunigt aufsteigende Blase wirkende Reibungskraft ist gleich ihrem Auftrieb: $V_B(\gamma_F - \gamma_G(x))$. In dem Volumenelement $F \cdot \Delta x$ steigen $n_B(x)$ Blasen mit dem mittleren Blasenvolumen V_B auf. Dann ist:

$$n_B(x) = \frac{\Delta V_G(x)}{V_B} = \frac{\xi_{Gdyn}(x) \cdot F \cdot \Delta x}{V_B}$$

Die Summe der Reibungskräfte im Volumenelement, bezogen auf den freien Querschnitt $F(\epsilon - \epsilon_{\text{Gstat}})$, ergibt eine Druckabnahme in x-Richtung:

$$-\frac{\Delta p_{\text{GF}}(x)}{\Delta x} = \frac{n_B(x) V_B (\gamma_F - \gamma_G(x))}{F(\epsilon - \epsilon_{\text{Gstat}}) \cdot \Delta x} = \frac{\epsilon_{\text{Gdyn}}(x) \cdot F \cdot x \cdot V_B (\gamma_F - \gamma_G(x))}{(\epsilon - \epsilon_{\text{Gstat}}) \cdot F \cdot \Delta x \cdot V_B}$$

Daraus folgt als Grenzwert für $\Delta x \rightarrow 0$:

$$-\frac{dp_{\text{GF}}(x)}{dx} = \frac{\epsilon_{\text{Gdyn}}(x)}{\epsilon - \epsilon_{\text{Gstat}}} (\gamma_F - \gamma_G(x))$$

Diese Beziehung läßt sich auch aus Gl.(2) (Kap.II,1.1) herleiten, wenn die Druckänderung in der ruhenden Flüssigkeit nur durch Auftriebskräfte hervorgerufen wird. Als Mittelwert über die Kolonnenhöhe gilt:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta p}{\Delta x} &= \gamma^* = \gamma_F - \frac{\epsilon_{\text{Gdyn}}}{\epsilon - \epsilon_{\text{Gstat}}} (\gamma_F - \gamma_G) \\ &= \frac{dp_{\text{GF}}}{dx} \end{aligned}$$

2.2 Reibung Gas - Füllkörper

Durch die festen Einbauten werden die aufsteigenden Gasblasen ständig umgelenkt und abgebremst, woraus eine Druckerhöhung $\delta_{\text{GK}}(x)$ über die Höhe des betrachteten Volumenelementes resultiert. Diese läßt sich aus der Differenz zwischen der gemessenen Gesamtdruckänderung $\left. \frac{\Delta p}{\Delta H} \right|_{(u_F=0)} = \delta_0$ und der in Kapitel II abgeleiteten Beziehung für als Mittelwert über die Kolonnenhöhe ermitteln:

$$\delta_{\text{GK}} = \delta_0 - \gamma^*$$

In Abb. 27 und 28 wurden die in den untersuchten Systemen gemessenen Werte für $\oint_0$ und γ^* über der Anströmgeschwindigkeit u_{oG} aufgetragen. Man sieht eine deutliche, in den verschiedenen Systemen unterschiedlich große Zunahme der Differenz zwischen der Gesamtdruckänderung $\oint_0$ und der Scheindichte γ^* . Ein Vergleich der Messungen in Raschigringschüttungen mit denen von Carleton et al.²⁴⁾ (s. Abb. 29) zeigt, daß $\frac{\Delta p}{\Delta H} \text{ total} \hat{=} \oint_0$ und $\frac{\Delta p}{\Delta H} \text{ statisch} \hat{=} \gamma^*$ einen ähnlichen Verlauf aufweisen. Der Gesamtdruck liegt, wahrscheinlich aufgrund der anderen geometrischen Abmessungen, etwas höher.

Da alle Parameter, die für den Unterschied zwischen den $\oint_{GK}$ -Werten der einzelnen Systeme maßgebend sind, auch den jeweiligen Gasvolumenanteil der Schüttung beeinflussen, war eine Verknüpfung zwischen $\oint_{GK}(x)$ und $\epsilon_G(x)$ zu vermuten. Setzt man unter Berücksichtigung der Kompensation von Gasdichte und Zahl der Blasen mit zunehmender Höhe

$$\oint_{GK}(x) = \alpha \cdot \epsilon_{Gdyn}(x) \cdot \gamma_G^*(x) \quad (23a)$$

und ersetzt $\epsilon_{Gdyn}(x) \cdot \gamma_G^*(x)$ mit Hilfe der aus der Kontinuitätsgleichung abgeleiteten Beziehung (Gl. (12))

$$p(x) \cdot \epsilon_{Gdyn}(x) = p(H) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}$$

dann wird mit:

$$\frac{p(x)}{p(H)} = \frac{\gamma_G^*(x)}{\gamma_G^*(H)}$$

$$\gamma_G^*(x) \cdot \epsilon_{Gdyn}(x) = \gamma_G^*(H) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}$$

Eingesetzt in Gl. (23a) ergibt sich damit für die von x unabhängige Druckerhöhung:

$$\oint_{GK} = \underbrace{\alpha \cdot \gamma_G^*(H)}_m \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}$$

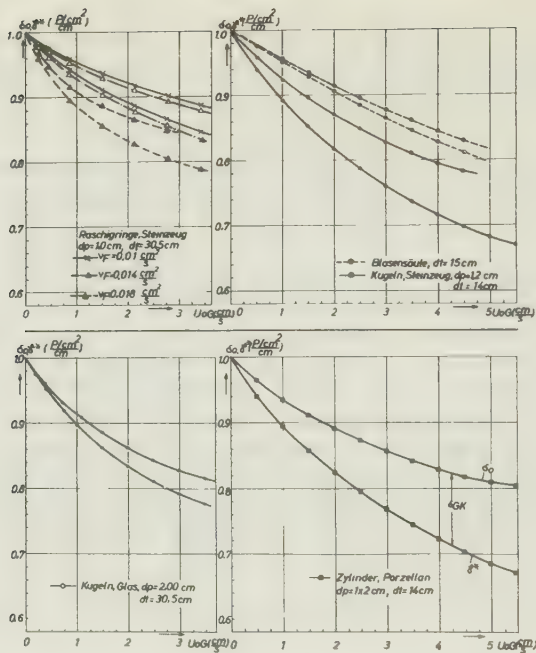


Abb.27/28: Scheinbares spezifisches Gewicht und Gesamtdruckänderung bei ruhender Flüssigphase

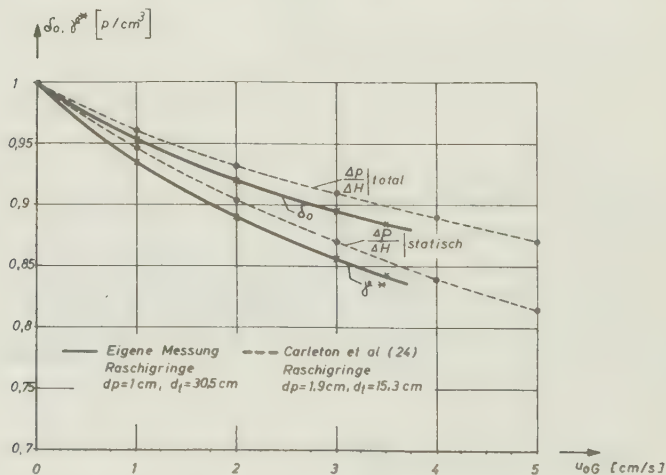


Abb.29: Vergleich von gemessenen Druckänderungen in Raschigringschüttungen

Trägt man die gemessenen Werte δ_{GK} über u_{oG}/u_G auf, so erhält man Geraden mit je nach Füllkörperart verschieden grossen Steigungen $m = \alpha \cdot \gamma_G(H)$ (s. Abb. 30). Bei Kenntnis von $\gamma_G(H)$ kann daraus der jeweilige "Widerstandskoeffizient" α ermittelt werden (s. Tabelle 3).

Tabelle 3

System	d_p [cm]	d_t [cm]	γ_F [cm ² /s]	α [-]
Blasensäule	-	15,0	0,01	70
Raschigringe	1,0	30,5	0,01	300
Raschigringe	1,0	30,5	0,014	300
Raschigringe	1,0	30,5	0,018	300
Glaskugeln	2,0	30,5	0,01	320
Steinzeugkugeln	1,2	14,0	0,01	535
Zylinder	1	14,0	0,01	700

In Blasensäulen ist α wegen des Fehlens fester Einbauten sehr gering, bei Schüttungen mit Vollkörpern nimmt α wegen der bei kleinen Füllkörpern häufigeren Umlenkung mit abnehmendem d_p zu. Für Raschigringe wurde unabhängig von der Zähigkeit der Flüssigphase ein Wert von 300 ermittelt.

2.3 Die Beschreibung des Druckverlaufs

Setzt man

$$\delta_{GK} = - \frac{dp_{GK}(x)}{dx} = \alpha \cdot \gamma_G(H) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}$$

und

$$- \frac{dp_{GF}(x)}{dx} = \frac{\epsilon_{Gdyn}(x)}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}} (\gamma_F - \gamma_G(x))$$

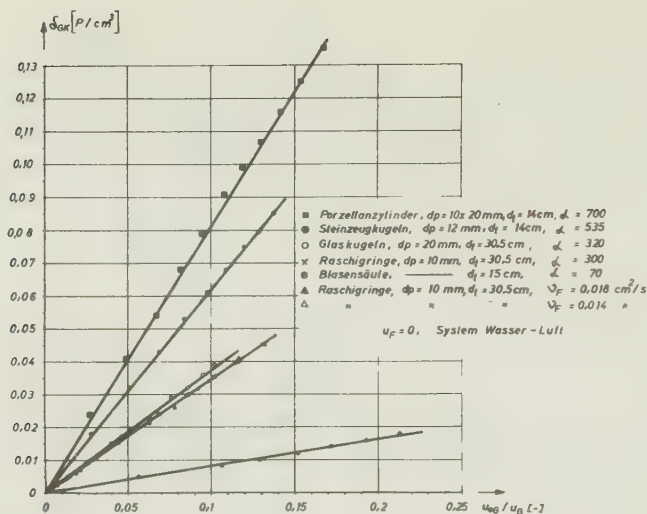


Abb.30: Ermittlung des Widerstandskoeffizienten

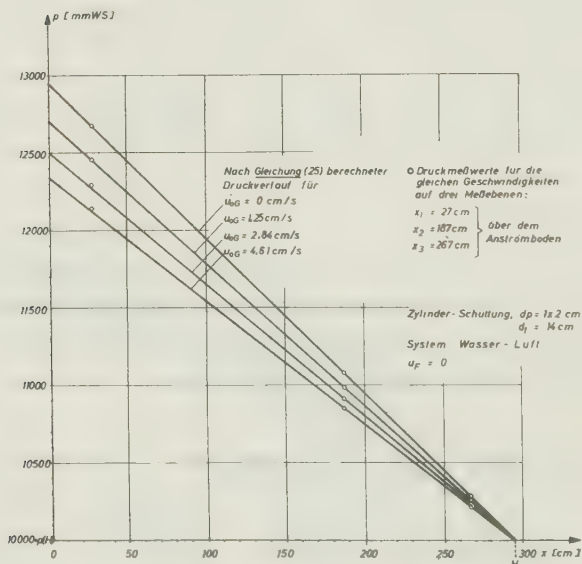


Abb.31: Abhängigkeit des Druckes von der Kolonnenhöhe am Beispiel der Zylinderschüttung

in Gleichung (23) ein und vernachlässigt wieder γ_G gegenüber γ_F , dann wird:

$$\frac{dp(x)}{dx} = \frac{\epsilon_{Gdyn}(x)}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}} \cdot \gamma_F - \alpha \cdot \gamma_G(H) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G} - \gamma_F$$

Ersetzt man weiterhin $\epsilon_{Gdyn}(x)$ mit Hilfe von Gleichung (12):

$$\epsilon_{Gdyn}(x) = \frac{p(H)}{p(x)} \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}$$

so wird:

$$\underbrace{-\frac{dp(x)}{dx}}_{\text{Gesamt-}} = \underbrace{\gamma_F}_{\text{druck-}} - \underbrace{\gamma_F \cdot \frac{p(H)}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}} \cdot \frac{u_{oG}}{u_G} \cdot \frac{1}{p(x)}}_{\text{Schwer-}} + \underbrace{\alpha \cdot \gamma_G(H) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}}_{\text{kraft - Druckverlust}} \quad (24)$$

$\text{Gesamt-} = \text{Schwer-}$
 $\text{druck-} = \text{kraft -}$
 änderung Auftrieb $+$ Druckverlust
 Gas-Fest

Führt man als Abkürzung ein:

$$a = \gamma_F \cdot \frac{p(H)}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}} \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}$$

$$b = \gamma_F + \alpha \cdot \gamma_G(H) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}$$

so wird:

$$\frac{dp(x)}{dx} - \frac{a}{p(x)} + b = 0$$

Die allgemeine Lösung dieser Differentialgleichung ist:

$$p(x) + \frac{a}{b} \ln (bp(x)-a) = b(K-x)$$

Eine explizite Darstellung von $p(x)$ ist nicht möglich. Berechnet man die Integrationskonstante K aus der Randbedingung:

$$p(x) = p(H) \quad \text{für } x = H$$

so wird

$$p(x) = p(H) + b(H-x) - \frac{a}{b} \ln \frac{(bp(x)-a)}{(bp(H)-a)}$$

und mit $Z = a/b$:

$$p(x) = p(H) + \gamma_F(H-x) + \alpha \cdot \gamma_G(H) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G} (H-x) - Z \cdot \ln \left(\frac{p(x)-Z}{p(H)-Z} \right) \quad (25)$$

Um die Funktion $p(x)$ für verschiedene Gasdurchsätze darstellen zu können, wurde Gl.(25) nach x aufgelöst:

$$x = H - \frac{p(x)-p(H)+Z \cdot \ln \left(\frac{p(x)-Z}{p(H)-Z} \right)}{\gamma_F + \alpha \cdot \gamma_G(H) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}}$$

Setzt man hierin die für ein System gegebenen Werte ε , $\varepsilon_{\text{Gstat}}$, $p(H)$, γ_F , $\gamma_G(H)$, $u_G = f(u_{oG})$ und α ein, so kann für vorgegebene Drucke und Gasdurchsätze die jeweils zugehörige Höhe x über dem Anströmboden bestimmt werden. Abb.31 zeigt den so ermittelten Kurvenverlauf am Beispiel der Zylinderschüttung. Bei einer Standardabweichung der in Abb.31 eingezeichneten Meßpunkte von Gleichung (25) von nur 13 mm WS erscheint es gerechtfertigt, den Druckverlauf in ruhender Flüssigkeit innerhalb des untersuchten Bereichs mit der angegebenen Gleichung zu beschreiben.

2.4 Die Gesamtdruckänderung

Um eine Beziehung für die Druckänderung in einer Aufstromkolonne infolge der Begasung bei ruhender Flüssigkeit angeben zu können, muß $p(x)$ als Funktion der Kolonnenhöhe, des Gasdurchsatzes und der Systemvariablen explizit gegeben sein. Dies ist nur durch Reihenentwicklung des in Gleichung (25) vorkommenden Logarithmus möglich.

Mit

$$\delta_o = \frac{p(o)-p(H)}{H}$$

folgt aus Gleichung (25):

$$\delta_o = \gamma_F + \alpha \cdot \gamma_G(H) \frac{u_{oG}}{u_G} - \frac{Z}{H} \ln \left(\frac{p(o)-Z}{p(H)-Z} \right)$$

Schreibt man für:

$$\ln \left(\frac{p(o)-Z}{p(H)-Z} \right) = \ln \left(1 + \frac{p(o)-p(H)}{p(H)-Z} \right) = \ln \left(1 + \frac{H \cdot \delta_o}{p(H)-Z} \right)$$

und berücksichtigt bei der Reihenentwicklung nur die beiden ersten Glieder:

$$\ln \left(1 + \frac{H \cdot \delta_o}{p(H)-Z} \right) = \frac{H \cdot \delta_o}{p(H)-Z} - \frac{1}{2} \left(\frac{H \cdot \delta_o}{p(H)-Z} \right)^2$$

so wird, wenn man weiterhin noch die oben angegebene Beziehung für Z einsetzt:

$$\delta_o = \frac{p(H)}{H} \left\{ (\epsilon - \epsilon_{Gstat}) \left(\frac{u_G}{u_{oG}} + \frac{\alpha \gamma_G(H)}{\gamma_F} \right) - 1 \right\} \cdot \left\{ 1 - \sqrt{1 - \frac{2H}{p(H)} \cdot \left(-\frac{F}{G_{stat}} \right) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G}} \right\}$$

Obwohl diese Gleichung die gemessene Druckänderung sehr gut beschreibt, erscheint sie für die praktische Anwendung zu unhandlich. Deshalb wurde versucht, eine einfachere, in der Genauigkeit noch ausreichende Beziehung für δ_o zu entwickeln:

Berücksichtigt man bei der Reihenentwicklung des Logarithmus lediglich das erste Glied, so wird:

$$\delta_o = \gamma_F - \frac{u_{oG}}{u_G} \left(\frac{\gamma_F}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}} - \alpha \cdot \gamma_G(H) \right) \quad (26)$$

Formt man Gleichung (24) entsprechend um:

$$-\frac{dp(x)}{dx} = \gamma_F - \frac{u_{oG}}{u_G} \left(\frac{\gamma_F}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}} \cdot \frac{p(H)}{p(x)} - \alpha \cdot \gamma_G(H) \right)$$

dann ist für

$$\frac{p(H)}{p(x)} = 1 \quad \text{und} \quad -\frac{dp(x)}{dx} = \delta_o$$

Gleichung (26) mit Gleichung (24) identisch.

Berücksichtigt man nun, daß $p(H)/p(x) = \beta$ (entsprechend dem in Abb.24 dargestellten Druckkorrekturfaktor $p(H)/p$) immer kleiner als 1 ist und interpretiert β gleichzeitig als einen durch die Vereinfachung notwendigen, konstant angenommenen Parameter, so ist:

$$\delta_o = \gamma_F - \frac{u_{oG}}{u_G} \left(\beta \cdot \frac{\gamma_F}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}} - \alpha \cdot \gamma_G(H) \right)$$

Der Parameter β kann durch Einsetzen der Meßwerte in die Gleichung

$$\beta = \frac{\gamma_F - \delta_o + \frac{u_{oG}}{u_G} \cdot \alpha \cdot \gamma_G(H)}{\frac{u_{oG}}{u_G} \cdot \frac{\gamma_F}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}}}$$

bestimmt werden. Es zeigt sich, daß β kaum vom Gasdurchsatz abhängt und für alle untersuchten Systeme annähernd konstant gleich 0,85 ist.

Damit läßt sich die Druckänderung pro Meter einer begasten Aufstromkolonne mit einer maximalen Abweichung von ca. 4% durch

$$\Delta p_0 = \gamma_F - \frac{u_{OG}}{u_G} \left(\frac{0,85 \gamma_F}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}} - \alpha \cdot \gamma_G(H) \right) \quad (27)$$

beschreiben (s. Abb. 32).

3. Der Druckverlust bei Einphasenströmung

Für die Ermittlung des Druckverlustes bei der Zweiphasenströmung muß neben dem Druckverlauf in ruhender Flüssigkeit und strömender Gasphase auch der Druckverlust bekannt sein, der sich ohne Gasdurchsatz infolge der Flüssigkeitsströmung einstellt.

Die zahlreich vorhandenen Meßwerte des Druckverlustes in einphasig durchströmten Schütttschichten wurden durch eine Gleichung von Ergun³⁰⁾ zusammengefaßt. Diese lautet für den gesamten Bereich von laminarer bis zu turbulenter Strömung:

$$\frac{\Delta p}{\Delta H} \cdot \frac{d_h^{*2}}{\eta_F \cdot u_{OF}} \cdot \frac{\epsilon^3}{(1-\epsilon)^2} = 150 + 1,75 \cdot \frac{Re^*}{1-\epsilon} \quad (28)$$

Darin ist der hydraulische Durchmesser

$$d_h^* = 6 \frac{V_K}{S_K} = \frac{6}{O_V}$$

und

$$Re^* = \frac{d_h^* \cdot u_{OF} \cdot S_F}{\eta_F} = \frac{6 u_{OF}}{O_V \cdot \nu_F}$$

Verwendet man in Analogie zu durchströmten Kanälen den hydraulischen Durchmesser

$$d_h = \frac{F_{\text{Flüssigkeit}}}{U_{\text{benetzt}}} = \frac{V_{\text{Flüss.}}}{S_{Kges}} = \frac{\epsilon}{O_V(1-\epsilon)}$$

und

$$Re_{oF} = \frac{u_F \cdot d_h}{\nu_F} = \frac{u_{oF}}{0_V(1-\epsilon)\nu_F}$$

dann wird mit $\delta_F = \frac{\Delta p}{\Delta H}$ aus Gleichung (28)

$$\psi(Re_{oF}) = \frac{g}{\gamma_F \cdot 0_V} \cdot \frac{\epsilon^3}{(1-\epsilon)} \cdot \frac{\delta_F}{u_{oF}} = \frac{4,16}{Re_{oF}} + 0,292 \quad (29)$$

Um die Übereinstimmung von Gleichung (29) mit den eigenen Messungen nachzuweisen, muß die spezifische Oberfläche der untersuchten Füllkörper bekannt sein (s. Tabelle 4).

Tabelle 4

Füllkörper	$\frac{S_K}{V_K} = 0_V$	$0_V \left[\frac{1}{cm} \right]$
Glaskugeln d = 2 cm	$\frac{6}{d}$	3
Steinzeugkugeln d = 1,2 cm	$\frac{6}{d}$	5
Porzellanzylinder d = 1 cm, l = 2 cm	$\frac{4}{d} + \frac{2}{l}$	5
Raschigringe(geom.) d _i =0,64cm, d _a =1cm	$\frac{4(d_a+d_i)}{d_a^2-d_i^2} + \frac{2}{l}$	13,1
Raschigringe*) (Hohlkörper) d _i =0,64cm, d _a =1cm $\xi_i = (d_i/d_a)^2$	$0_{VZyl} \cdot \left(\frac{1 + \frac{2}{3}\sqrt{\xi_i} + \frac{1}{3}\xi_i}{1 - \xi_i} \right)^n$ n = 1,3	21,3

*) Diese Berechnungsmethode, bei welcher der Exponent n ein Maß dafür ist, welcher Anteil am gesamten Hohlraum für die Strömung versperrt ist, wurde von Brauer³¹⁾ vorgeschlagen. In dem hier untersuchten Bereich wurde mit n=1,3 eine gute Übereinstimmung mit der Ergun'schen Formel erreicht. (Von Brauer wurde für den gesamten Bereich n=1,9 mit ca. 20% Fehler angegeben.)

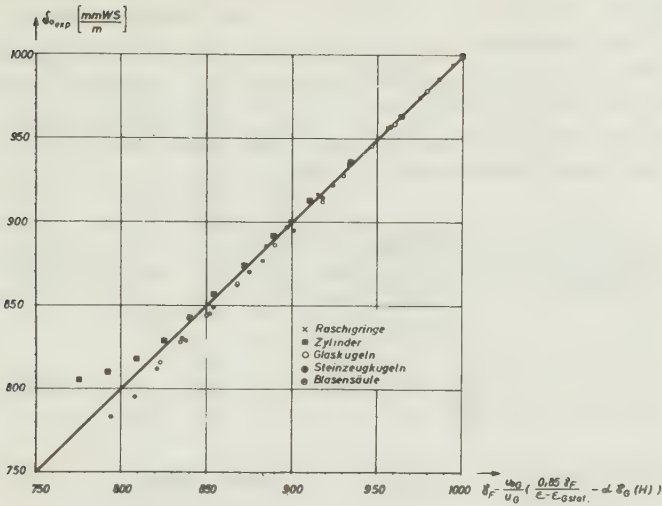


Abb.32: Korrelation der Gesamtdruckänderung in ruhender Flüssigkeit

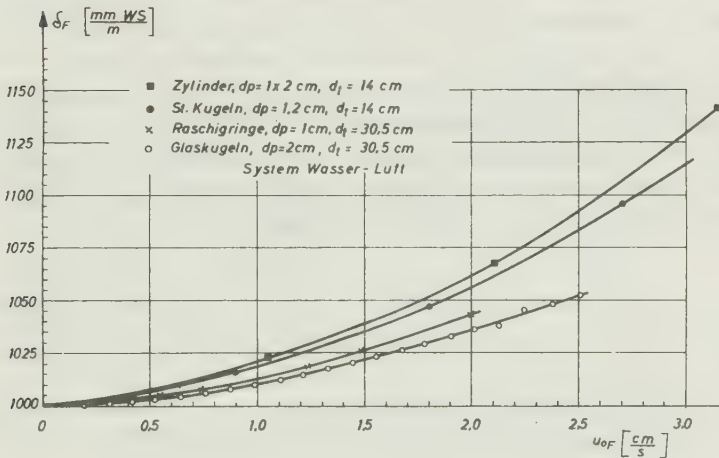


Abb.33: Druckverlust bei einphasiger Strömung durch Schütttschichten

Setzt man die Werte für O_V und ε sowie den in den verschiedenen Systemen gemessenen Druckverlust als Funktion von u_{oF} (s. Abb. 33) in Gleichung (29) ein, so kann man den jeweiligen Widerstandsbeiwert $\Psi(Re_{oF})$ berechnen. Abb. 34 zeigt die recht gute Übereinstimmung (max. Abweichung 12%) zwischen den eigenen, in den verschiedenen Systemen erhaltenen Meßwerten und der von Ergun angegebenen Beziehung.

Der Druckverlust der strömenden Flüssigphase allein (ohne Berücksichtigung der Druckänderung durch die Höhe der Flüssigkeitsäule) läßt sich damit beschreiben als:

$$\delta_F = (0,292 + \frac{4,16}{Re_{oF}}) \cdot \frac{(1-\varepsilon)O_V}{\varepsilon^3} \cdot \frac{\eta_F}{g} u_{oF}^2 \quad (30)$$

Ersetzt man hierin noch u_{oF} durch die oben definierte Reynoldszahl, so wird:

$$\delta_F = \frac{\eta_F^2}{g_F} \left(\frac{O_V(1-\varepsilon)^3}{\varepsilon} \right) (0,292 Re_{oF}^2 + 4,16 Re_{oF}) \quad (31)$$

Diese Beziehung ist für die vier untersuchten Systeme zusammen mit den Meßwerten in Abb. 35 dargestellt. Die geometrische Form der Füllkörper wird durch Gleichung (31) nicht berücksichtigt, so daß sich für die in O_V und ε übereinstimmende Zylinder- und Steinzeugkugelschüttung nur eine Kurve ergibt. Der gemessene Druckverlust durchströmter Kugelschüttungen liegt jedoch unter sonst gleichen Bedingungen etwas niedriger als der von Zylinderschüttungen.

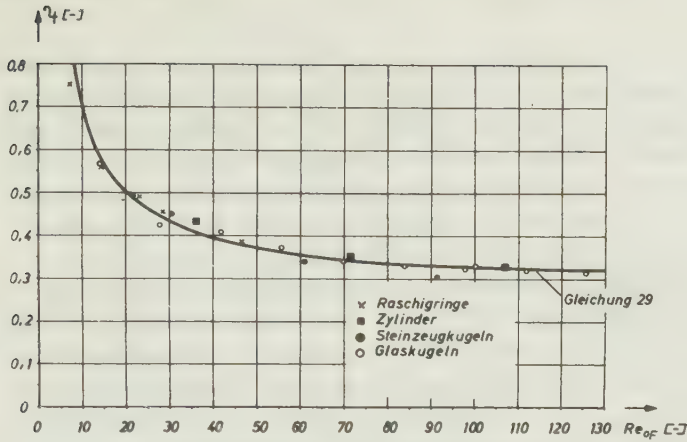


Abb.34: Widerstandsbeiwert einphasig durchströmter Schütttschichten

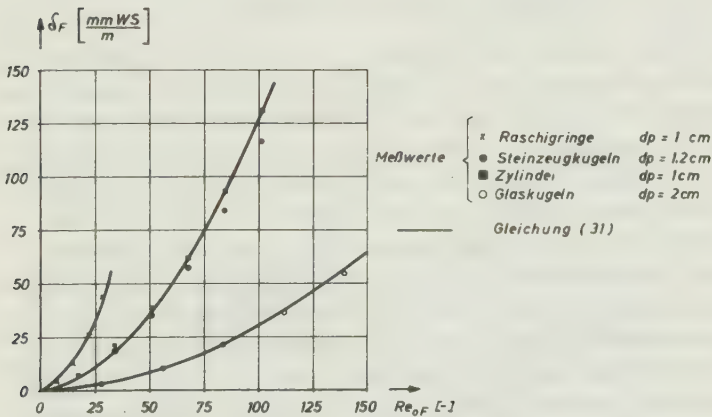
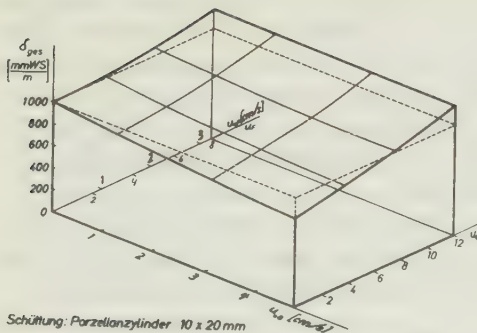


Abb.35: Gemessener und berechneter Druckverlust bei Einphasenströmung durch Schütttschichten

4. Der Gesamtdruckverlust bei strömender Gas- und Flüssigphase

Aus der Überlagerung der durch die Begasung hervorgerufenen Druckerniedrigung und dem Druckanstieg, der von der strömenden Flüssigphase herrührt, resultiert schließlich der Gesamtdruckverlust bei der Zweiphasenströmung. Durch diese Überlagerung kommt es zu sehr komplexen Wechselwirkungen (Abnahme von $\epsilon_F = \epsilon - \epsilon_G$ und erhöhte Turbulenz in der flüssigen Phase durch die Begasung, erhöhter Druck auf die Gasphase etc.), die eine einfache Addition der Einzeleffekte ausschließen. Die dreidimensionale Darstellung der Meßwerte (s. Abb. 36) veranschaulicht den Zusammenhang zwischen dem Druckverlust und der Gas- bzw. Flüssigkeitsbelastung. Der Druckanstieg mit wachsendem u_{oF} ist um so stärker, je höher der Gasdurchsatz ist, während die Druckabsenkung mit zunehmendem u_{oG} um so geringer ist, je höher die Flüssigkeitsbelastung liegt. Beides liegt vorwiegend an der Zunahme der effektiven Flüssigkeitgeschwindigkeit $u_F = u_{oF}/(\epsilon - \epsilon_G)$ mit wachsendem Gasdurchsatz (s. Angaben für u_F in Abb. 36) und an der höheren Turbulenz durch die aufsteigenden Gasblasen.

In Abb. 37 und 38 sind die Meßwerte für den Druckverlust aller untersuchten Systeme über u_{oF} und u_{oG} als Parameter aufgetragen. Dabei stellt jeder Meßpunkt den Mittelwert aus drei bis fünf Einzelmessungen dar. Man sieht, daß der Abstand zwischen den Kurven verschiedener Gasdurchsätze mit zunehmendem Flüssigkeitsdurchsatz ständig abnimmt, und es ist zu vermuten, daß es wegen der stärkeren Zunahme von u_F bei noch höheren Flüssigkeitsbelastungen zu Überschneidungen kommt. Eine weitere Steigerung des Gas- bzw. Flüssigkeitsdurchsatzes über den untersuchten Bereich hinaus war jedoch mit den vorhandenen technischen Einrichtungen nicht möglich, sie erscheint auch aufgrund der dann sehr kleinen Verweilzeiten für praktische Belange nicht sinnvoll. Bei den größten bisher gewählten Durchsätzen liegen die Verweilzeiten ($\tau = H/u$) in den drei Meter hohen Kolonnen für die Gasphase unter 10 sec, für die Flüssigphase unter 25 sec.



Schüttung: Porzellanzylinder 10×20 mm

Abb.36: Druckänderung in Abhängigkeit von Gas- und Flüssigkeitsdurchsatz

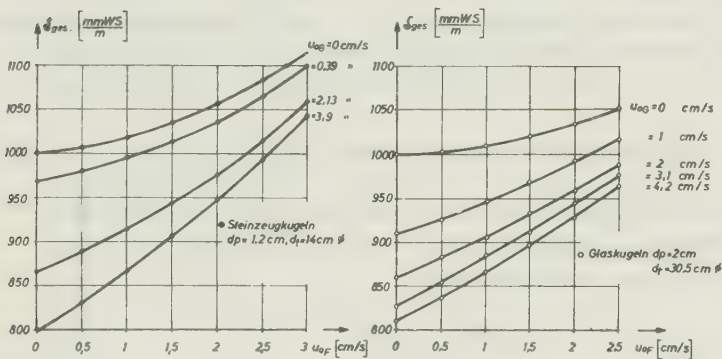


Abb.37: Gesamtdruckänderung in Kugelschüttungen

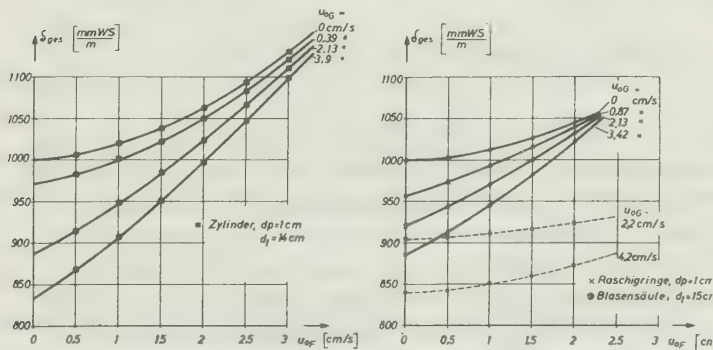


Abb.38: Gesamtdruckänderung in Zylinder- und Raschiringeschüttungen und in Blasensäulen

Um eine Gleichung für den Druckverlust in Aufstromkolonnen zu entwickeln, lag es nahe, die von Lockhart und Martinelli vorgeschlagenen Parameter $\mathcal{Y}_G, \mathcal{Y}_F$ und χ auf das vorliegende Problem zu übertragen. Bei den hier in Frage kommenden geringen Leer- raumgeschwindigkeiten der Gasphase ist jedoch der in $\mathcal{Y}_G$ und χ enthaltene Term $(\frac{\Delta p}{\Delta H})_G$, d.h. der Druckverlust der Gasphase in der trockenen Schüttung so gering, daß er meßtechnisch kaum nachzuweisen ist. Die Parameter $\mathcal{Y}_G$ und χ würden damit unver- hältnismäßig groß und sehr fehlerhaft sein. Deshalb soll hier durch eine Verknüpfung der schon bekannten Einzeleffekte δ_0 und δ_F eine Beziehung für δ_{ges} aufgestellt werden.

Setzt man voraus, daß alle durch die Zweiphasenströmung verur- sachten Wechselwirkungen, d.h. die je nach Durchsatz, Schüttungs- art und physikalischen Eigenschaften der fluiden Phasen unter- schiedliche Überlagerung von δ_0 und δ_F durch eine Funktion

$$\mathcal{Y}(u_{oF}, u_{oG}, \varepsilon, \sigma_V, d_p/d_t, \sigma_F, v_F, \gamma_G, \gamma_F)$$

erfaßt werden können, die hier ein Maß für die Abnahme der Druckabsenkung infolge der Begasung mit wachsendem u_{oF} sein soll, dann folgt aus Abb.39:

$$\delta_{ges} = \gamma_F + \delta_F - \mathcal{Y}(\gamma_F - \delta_0) \quad (32)$$

Zur Ermittlung der Funktion $\mathcal{Y}$ wird Gleichung (32) nach $\mathcal{Y}$ auf- gelöst:

$$\mathcal{Y} = \frac{\gamma_F + \delta_F - \delta_{ges, exp}}{\gamma_F - \delta_0}$$

Setzt man hierin die für jedes System und für alle Gas- und Flüssigkeitsdurchsätze nach Gleichung (27) bzw. (30) berech- neten Werte δ_0 und δ_F sowie die gemessenen Druckverluste $\delta_{ges, exp}$ ein, so ergeben sich die in Abb.40 dargestellten Werte für $\mathcal{Y}$. Sie wurden über u_{oF} aufgetragen, da bei der Suche nach einer Korrelation zwischen $\mathcal{Y}$ und den oben genann- ten Variablen (s. Anhang A2) der Flüssigkeitsdurchsatz den stärksten Einfluß auf $\mathcal{Y}$ aufwies. Neben den Werten für die

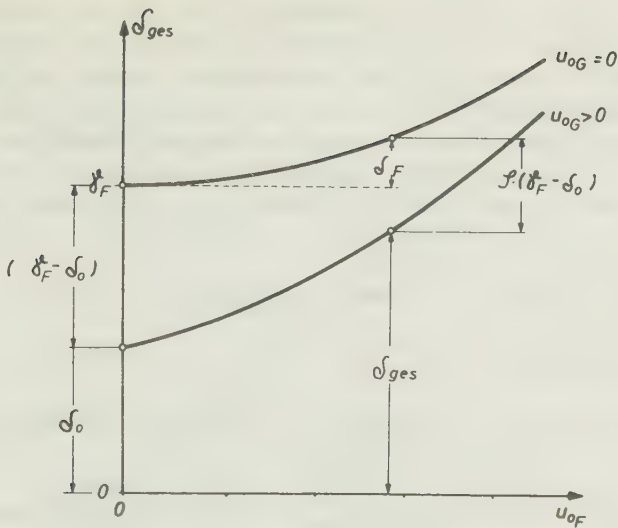


Abb.39: Kombination der Einzeleffekte zur Gesamtdruck-
änderung

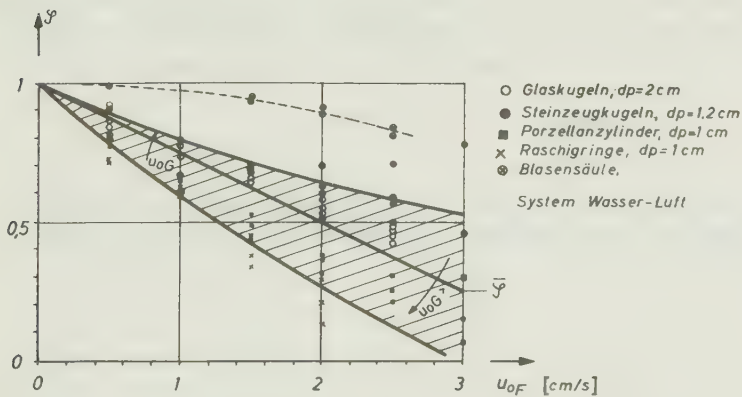


Abb.40: Die Korrekturfunktion in Abhängigkeit vom
Flüssigkeitsdurchsatz

Blasensäule liegt φ für alle Schüttungen und für alle eingestellten Gasdurchsätze innerhalb eines von $\varphi=1$ (bei $u_{oF}=0$) ausgehenden und mit wachsendem u_{oF} breiter werdenden Bandes. Da zwischen φ und dem Gasdurchsatz sowie den die jeweilige Schüttung charakterisierenden Variablen kein eindeutiger Zusammenhang festgestellt werden konnte (s. Anhang 2), soll hier in erster Näherung eine einzige, für alle Systeme gültige mittlere Funktion

$$\bar{\varphi} = 1 - \frac{u_{oF}}{4} \quad (u_{oF} [\text{cm/s}])$$

angenommen werden.

Setzt man $\bar{\varphi}$, δ_F und δ_o in Gleichung (32) ein, so wird (Gl.(33)):

$$\delta_{\text{ges}} = \delta_F + \left(0,292 + \frac{4,16}{\text{Re}_{oF}}\right) \frac{0,1(1-\varepsilon)}{\varepsilon^3} \cdot \delta_F u_{oF}^2 - \left(1 - \frac{u_{oF}}{4}\right) \cdot \frac{u_{oG}}{u_G} \left(\frac{0,85 \delta_F}{\varepsilon - \varepsilon_{\text{Gstat}}} - \alpha \cdot \delta_G^{(H)}\right)$$

In Abb.41 sind die gemessenen Werte über den nach Gleichung (33) berechneten aufgetragen. Die Darstellung zeigt, daß es trotz der starken Vereinfachung möglich ist, innerhalb des untersuchten Bereichs den Druckverlust in den verschiedenen Schüttungen mit Gleichung (33) zu berechnen. Dabei beträgt die Standardabweichung der 81 Meßwerte von der angegebenen Beziehung:

$$s = 14,1 \frac{\text{mm WS}}{\text{m}}$$

Bezieht man diese auf den hier erfaßten Bereich von 800 bis 1100 mmWS/m (= 300 mmWS/m), dann beträgt die mittlere Abweichung 4,7%.

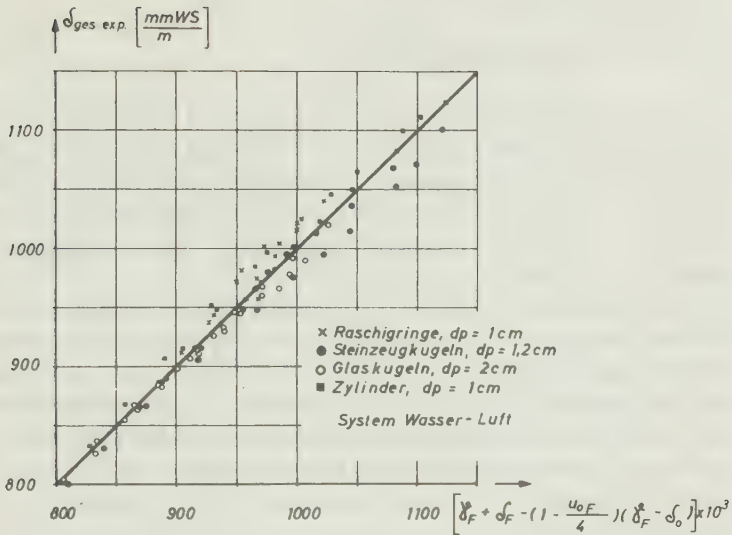


Abb.41: Korrelation des Gesamtdruckverlustes

IV. Die Axialdispersion der flüssigen Phase

1. Theoretische Grundlagen

1.1 Die Bedeutung der Dispersion

Der Einfluß des Strömungszustandes auf den Umsatz in kontinuierlich betriebenen chemischen Reaktoren wurde schon 1908 von Bodenstein und Wolgast³⁹⁾ beschrieben. Durch Einführung idealer Grenzfälle (vollkommene Durchmischung und Pfropfenströmung) gewann man zur Beschreibung von Vermischungsvorgängen erste Ansätze, die 1937 von Damköhler et al.⁴⁰⁾ aufgegriffen und auf einfache technische Reaktoren angewendet wurden. Nachdem schließlich nach 1950 mit einer intensiven Erforschung der Vermischung in chemischen Apparaten (basierend auf ersten Arbeiten von Danckwerts⁴¹⁾) begonnen wurde, sind heute die grundlegenden mathematischen Modelle sowie die an den gängigen Apparatetypen gewonnenen experimentellen Ergebnisse bereits in Lehrbüchern (z.B.¹⁸⁾) enthalten.

Aus neueren, den heutigen Kenntnisstand zusammenfassenden Arbeiten (z.B.⁴²⁾) geht hervor, daß es noch an experimentellen Untersuchungen komplizierterer Systeme fehlt, um eine den gestiegenen Anforderungen genügende Genauigkeit der Vorausberechnung von Selektivität und Umsatz chemischer Reaktionen anzustellen. Hierbei sind es vor allem die Dreiphasen-Systeme (zusammenhängende flüssige und verteilte Gasphase bei ruhender oder strömender fester Phase), die bisher kaum im Hinblick auf den Zusammenhang zwischen Hydrodynamik und Reaktionsgeschehen untersucht worden sind. Solche Untersuchungen sind dann von Interesse, wenn es bei komplexen Reaktionen auf die Ausbeute an erwünschtem Produkt, d.h. auf die Selektivität ankommt (siehe z.B.⁵⁹⁾). Der Einfluß der Vermischung auf den Umsatz ist, wie in Kapitel IV,4 noch gezeigt wird, nur in Sonderfällen gravierend.

Meßwerte über die axiale Vermischung in den hier untersuchten Aufstromkolonnen wurden bisher nur in den am Institut für Chemische Technologie der Technischen Hochschule Darmstadt durchgeführten Arbeiten¹⁻⁵⁾ angegeben; über die in der Strömungscharakteristik ähnlichen Gegenstromkolonnen sind in der Literatur einige Arbeiten^{8,11,12)} veröffentlicht worden. Die Vermischung der flüssigen Phase in Blasensäulen, die als Grenzfall von Aufstromkolonnen mit $\xi=1$ angesehen werden können, wurde von mehreren Autoren untersucht^{26,28,53,54,17)}. In 3.1 wurden die verschiedenen Ergebnisse den eigenen Messungen an Blasensäulen gegenübergestellt.

Da der Ausdruck "Vermischung" in vielen Arbeiten für verschiedene Einzelphänomene verwendet wird, sollen hier unter dem Oberbegriff "Dispersion" all die Effekte zusammengefaßt werden, die bewirken, daß die Moleküle der kontinuierlich zugeführten fluiden Phasen am Ausgang des Apparates ein unterschiedliches Alter - bezogen auf den Eintrittspunkt - aufweisen. Gründe für diese unterschiedliche Verweilzeit sind z.B. die konvektive Rückvermischung, die molekulare Diffusion aufgrund von Konzentrationsgradienten, Geschwindigkeitsänderungen quer zur Strömungsrichtung sowie die Existenz von stagnierenden Zonen oder bevorzugten Strömungskanälen (z.B. "Kurzschlüssen").

1.2 Experimenteller Nachweis der Axialdispersion

Eine Aussage über die das Verweilzeitverhalten charakterisierenden Parameter (augenblickliche Lage und Alter jedes Teilchens) kann im - hier allein interessierenden - stationären Betrieb nur dadurch gewonnen werden, daß man irgendeine physikalische Eigenschaft der zu untersuchenden Phase am Eingang des Systems mit der Zeit ändert. Dies geschieht am einfachsten durch eine zeitlich veränderliche Zugabe eines Spurstoffes (Indikator), der im Hinblick auf das Strömungsverhalten die gleichen Eigenschaften wie der Hauptstrom besitzt und sich von diesem z.B. durch die Farbe, die elektrische Leit-

fähigkeit, die Radioaktivität oder die Wärmeleitfähigkeit unterscheidet^{*)}). Die zeitliche Änderung der Indikatorgröße (Indikatormodulation) kann nach einer Stoßfunktion, einer Sinus- oder Stufenfunktion oder in Form eines statistischen Rauschens erfolgen. Bedingt durch die Übertragungseigenschaften der Strecke (hier der Kolonne) wird diese Eingangsfunktion zu einer korrespondierenden Funktion transformiert und kann in einiger Entfernung von der Eintrittsstelle bzw. am Ausgang des Apparates registriert werden. Man erhält damit eine Integralaussage über die Transporteigenschaften der Kolonne; z.B. resultiert aus der Stoßmarkierung die Verweilzeitverteilungsfunktion des Indikators - und damit unter später noch anzugebenden Voraussetzungen - auch die Verweilzeitverteilung der Teilchen der untersuchten strömenden Phase.

In der vorliegenden Arbeit diente als Indikator verdünnte Salzsäure^{**)}, die sich durch ihre elektrische Leitfähigkeit von dem als flüssige Phase verwendeten vollentsalzten Wasser unterscheidet. Die Zugabe des Indikators erfolgte - flächenförmig über den ganzen Querschnitt - nach einer Stoßfunktion in einiger Entfernung vom Anströmboden innerhalb der Schüttung. Um den Fehler, der bei einer nicht idealen Indikatormodulation auftritt, auszuschließen, wurde die Leitfähigkeit (als Maß für die Konzentration) nach einer von Aris⁴³⁾ vorgeschlagenen Methode in mehreren Ebenen stromabwärts von der Markierungsstelle gemessen. Damit kann die in der ersten Meßebene registrierte Funktion als Indikatormodulation angesehen und zu den weiter stromabwärts gemessenen, transformierten Funktionen in Beziehung gesetzt werden (s. Kap. IV, 1.3).

Während man aus der Form der Verweilzeitverteilungskurve schon qualitativ abschätzen kann, ob z.B. starke Abweichung von idealer Pfropfenströmung (zunehmende Spreizung) oder ein Austausch mit stagnierenden Zonen (zunehmende Asymmetrie der

*) Bei der Zweiphasenströmung ist außerdem auf einen geringen Dampfdruck des Indikators zu achten, da sonst ein Teil des Spurstoffes in die Gasphase übergeht.

**) Auf den Zusammenhang zwischen Konzentration und elektrischer Leitfähigkeit wird in 2.1 noch näher eingegangen.

Kurve) auftritt, muß zur quantitativen Bestimmung charakteristischer Parameter, welche die Dispersion beschreiben, eine Relation zwischen den gemessenen Kurven und den auf einem mathematischen Modell basierenden theoretischen Lösungen aufgestellt werden.

1.3 Die Bestimmung des Dispersionskoeffizienten aus der Verweilzeitverteilungskurve

Die mathematische Beschreibung des Verweilzeitspektrums eines kontinuierlich durchströmten Apparates ist möglich, indem man entweder das Verweilzeitverhalten der einzelnen Elemente in dem Bilanzgebiet als stochastischen Prozeß betrachtet (siehe z.B.⁴⁴⁾) oder Erhaltungsgleichungen für Masse, Impuls und Energie innerhalb des Bilanzraumes aufstellt. Zum Aufstellen solcher Gleichungen sind Modellvorstellungen über die Transportmechanismen nötig, die trotz möglichst exakter Beschreibung des physikalischen Vorganges einfach genug sein müssen, um eine - evtl. geschlossene - mathematische Lösung des Problems zu ermöglichen. Von den möglichen Modellen, die von Hofmann⁴⁵⁾ auf ihre Anwendbarkeit untersucht wurden, hat sich zur Beschreibung von einphasig durchströmten Rohrreaktoren das Diffusions- bzw. Dispersionsmodell durchgesetzt, weil es den Transportmechanismus der individuellen Teilchen als große Zahl zufälliger Schritte in Längs- und Querrichtung am besten erfaßt.

Wird dabei die Konzentrationsverteilung nicht durch Temperaturgradienten beeinflusst und ist sowohl die effektive Geschwindigkeit der strömenden Phase als auch der Dispersionskoeffizient als Funktion von Ort und Zeit bekannt, so kann auf die sonst simultan zu lösende Impuls- und Energiebilanz verzichtet werden. Die Konzentrationsänderung folgt dann aus der allgemeinen Materialbilanz:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u_i \frac{\partial c}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(D \frac{\partial c}{\partial x_i} \right) + r + s \quad * \quad (34)$$

*) Es gelte die Einstein'sche Summationsvereinbarung.

Durch folgende physikalisch begründete Annahmen läßt sich Gleichung (34) noch vereinfachen:

- a) Der Dispersionskoeffizient sei unabhängig von den Ortskoordinaten. Diese Vereinfachung ist sicher bei stark ortsabhängigen Strömungsmechanismen unzulässig; eine Änderung von D mit der Höhe der Kolonne ließ sich jedoch in Aufstromkolonnen experimentell nicht nachweisen, obwohl aufgrund der Zunahme der Gasblasen mit zunehmender Höhe eine stärkere turbulente Vermischung zu vermuten wäre.
- b) Es finde keine Reaktion statt ($r = 0$).
- c) Es bestehen keine Senken oder Quellen für die betrachtete Komponente (hier für den Indikator). In früheren Arbeiten wurde festgestellt, daß keine merkliche Adsorption von Salzsäure an Füllkörpern stattfindet ($s = 0$).
- d) Konzentrationsgradienten existieren nur in der Hauptströmungsrichtung. Bedingt durch die flächenförmige Zugabe des Indikators über den gesamten Querschnitt (s.⁵¹), können bei turbulenter Durchströmung eines Rohres von großem L/d_t -Verhältnis die radialen Konzentrationsgradienten vernachlässigt werden.
- e) Die Strömungsgeschwindigkeit u_{Fx} sei konstant über Höhe und Querschnitt der Kolonne. Diese Annahme scheint berechtigt, nachdem z.B. von Cairns et al.⁴⁶) praktisch ebene Strömungsprofile in einphasig durchströmten Schüttungen nachgewiesen wurden. Die durch die Ausdehnung der Gasphase bedingte Höhenabhängigkeit der Geschwindigkeit:

$$u_F(x) = \frac{u_{oF}}{\epsilon - \epsilon_G(x)}$$

läßt sich über Gl.(14) berechnen und beträgt hier maximal 3%.

Damit wird:

$$\frac{\partial c_F}{\partial t} + u_{Fx} \frac{\partial c_F}{\partial x} = D_{AF} \cdot \frac{\partial^2 c_F}{\partial x^2} \quad (35)$$

Die Anwendung dieser für die Einphasenströmung abgeleiteten Modellgleichung auf die zusammenhängende flüssige Phase bei der Zweiphasenströmung erscheint gerechtfertigt, da die aufsteigenden Gasblasen lediglich eine Erhöhung der Turbulenz in der Flüssigkeit hervorrufen und dadurch den konvektiven Anteil des globalen Dispersionskoeffizienten erhöhen.

Zur Bestimmung des axialen Dispersionskoeffizienten D_{AF} aus Meßwerten muß die Differentialaussage (Gl.(35)) zu der gemessenen Verweilzeitverteilungskurve in Beziehung gesetzt werden. Dies geschieht zweckmäßig über die Momente^{*} der Verteilungsfunktion, da diese aus Gleichung (35) sehr einfach über eine Laplace-Transformation⁴⁷⁾ berechnet und aus der gemessenen Kurve leicht ermittelt werden können.

Wendet man das von Aris⁴³⁾ vorgeschlagene Verfahren mit Hilfe der von v.d.Laan⁴⁷⁾ angegebenen Randbedingungen auf den hier vorliegenden Fall an, so folgt z.B. für die Meßstrecke $x_1 \div x_2$:

$$\frac{\Delta \bar{\sigma}_t^2}{(\bar{t})^2} = \frac{\bar{\sigma}_{t2}^2 - \bar{\sigma}_{t1}^2}{(\bar{t}_2 - \bar{t}_1)^2} = \frac{2}{Bo_{2-1}} \quad (36)$$

Darin bedeuten:

$$Bo_{2-1} = \frac{u_F(x_2 - x_1)}{D_{AF}} \quad (\text{Bodenstein'sche Kenngröße})$$

*) Das erste und zweite, um das erste gebildete Moment genügen zur Bestimmung von D_{AF} , wenn das obige Dispersionsmodell zugrunde gelegt wird. Bei Verwendung eines Modells, das z.B. den Austausch mit stagnierenden Zonen berücksichtigt, muß auch das sehr sensitive dritte Moment als Maß für die Schiefe der Verteilungskurve bestimmt werden⁴⁸⁾.

$$\bar{t} = \frac{\int_0^{\infty} t \cdot c dt}{\int_0^{\infty} c dt} \quad \begin{array}{l} \text{(erstes Moment, normiert} \\ \text{über dem nullten Moment} \\ \text{= mittlere Aufenthalts-} \\ \text{zeit)} \end{array} \quad (36a)$$

$$\sigma_t^2 = \frac{\int_0^{\infty} (t - \bar{t})^2 c dt}{\int_0^{\infty} c dt} \quad \begin{array}{l} \text{(zweites Moment über dem} \\ \text{Mittelwert, normiert} \\ \text{über dem nullten Moment} \\ \text{= Varianz)} \end{array} \quad (36b)$$

Die Beziehung (Gl.(36)) zur Bestimmung von D_A über das Dispersionsmodell ist eine Näherungslösung, deren Anwendung nur gerechtfertigt ist, wenn die Entfernung zwischen Meßstelle und Reaktorausgang so groß gemacht wird, daß Auslauf-effekte vernachlässigt werden können. Die von Bischoff⁵⁰⁾ angegebenen Bedingungen, unter denen das System als unendlich ausgedehnt betrachtet werden kann, wurde bei dem Aufbau der Versuchsanlage von Böxkes⁵¹⁾ berücksichtigt.

In diesem Modellfall des unendlich lang gedachten Systems stimmen die Momente der gemessenen Konzentrations-Zeit-Kurve nicht mit denen der wirklichen Verweilzeitverteilungsfunktion überein, da Rückdiffusion an der Meßstelle auftritt. Pethö⁴⁹⁾ und Molerus⁴⁴⁾ geben übereinstimmend als Abweichung zwischen den Momenten der gemessenen Kurve (Index: "tracer" und der wahren Verweilzeitverteilungsfunktion (Index: "VWZ) folgende Beziehung an:

$$\bar{t}_{\text{tracer}} - \bar{t}_{\text{VWZ}} = \frac{1}{Bo} \cdot \left(\frac{\Delta x}{u} \right) = \frac{D_A}{u^2}$$

$$\sigma_{\text{tracer}}^2 - \sigma_{\text{VWZ}}^2 = \frac{3}{Bo^2} \cdot \left(\frac{\Delta x}{u} \right)^2 = 3 \left(\frac{D_A}{u^2} \right)^2$$

Verwendet man zur Bestimmung der Bodenstein'schen Kenngröße die Beziehung (36), dann wird diese Abweichung durch die Differenzbildung eliminiert. Nimmt man jedoch eine ideale

Stoßfunktion als Indikatormodulation an und berechnet den Dispersionskoeffizienten aus den Momenten der nur an einer Meßstelle registrierten Kurve (s. Kap. IV, 2.3):

$$\frac{\sigma_{\text{ttracer}}^2}{\bar{t}_{\text{tracer}}^2} = 2 \frac{D_{\text{AF}}}{u_{\text{F}} x} + 8 \left(\frac{D_{\text{AF}}}{u_{\text{F}} x} \right)^2 \quad (37)$$

dann muß der angegebene Fehler berücksichtigt werden. Parallel zu der Auswertung nach (36) wurde der Dispersionskoeffizient bei allen Versuchen auch aus Gleichung (37) berechnet. Dabei wurden jedoch keine von der Differenzenmethode signifikant abweichenden Werte gefunden, da sich offensichtlich der durch die nicht ideale Indikatormodulation hervorgerufene Fehler gegen den Effekt der Rückvermischung an der Meßstelle in etwa aufhob.

2. Versuchsdurchführung und Auswertung

2.1 Die Versuchsanlage

Da die Versuchsanlage bereits von Böxkes⁵¹⁾ ausführlich beschrieben wurde, sei hier lediglich noch einmal eine Zusammenstellung der wichtigsten technischen Daten der beiden Schüttungen, in denen die Axialdispersion der flüssigen Phase untersucht wurde, aufgeführt (s. Tabelle 5); ein Schema der gesamten Anlage ist in Abb. 42 dargestellt.

Bei der Untersuchung von Wasser-Glycerin-Mischungen mit Zähigkeiten von 0,014 bzw. 0,018 cm²/s war es wegen des hohen Glycerinpreises notwendig, die nach wenigen Markierungsversuchen "saure" Flüssigkeit zu regenerieren. Sie wurde dazu über Nacht durch einen Ionenaustauscher gepumpt, der die Wasserstoffionenkonzentration ohne Beeinflussung der Zähigkeit der Mischung herabsetzte.

Tabelle 5

	Raschigringe	Kugeln
Innerer Kolonnen- durchmesser	30,5 cm	30,5 cm
Höhe der Schütt- schicht	310 cm	314 cm
Abstand der Meßebenen vom Anströmboden:		
x ₁ =	50 cm	50 cm
x ₂ =	112 cm	112 cm
x ₃ =	212 cm	212 cm
Zahl der Meßzellen pro Meßebene	5	4
Anströmboden:		
a) Gasphase	Spiralrohr	Düsenplatte
Düsendurchmesser	0,6 mm	0,3 mm
b) Flüssigphase	Sinterplatte	Lochplatte
Düsendurchmesser	100 μ	30 mm
Füllkörper:		
Material	Acidur-Steinzeug	Maschinen- glas
Abmessung	10x10x1,8 mm	20 mm $\varnothing$
spezifisches Gewicht	2,31 p/cm ³	2,48 p/cm ³
Schüttgewicht	80 kp/100l	145 kp/100l
spezifische Oberfläche	382 m ² /m ³	177 m ² /m ³
Volumen der leeren Kolonne	226,4 l	229,4 l
Zwischenraumvolumen	152,0 l	92,3 l
Porosität	0,67	0,402

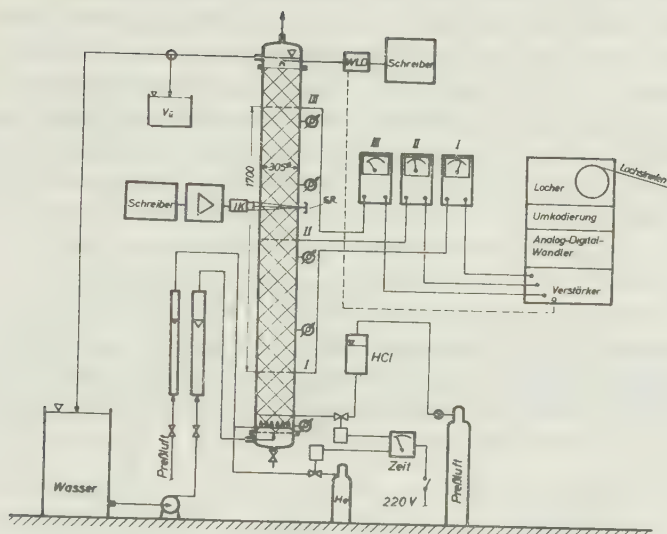


Abb.42: Versuchsanlage zur Messung der Axialdispersion
der flüssigen Phase

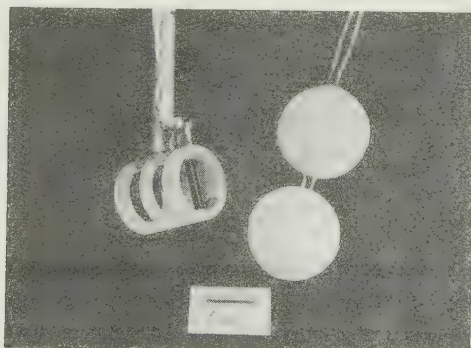


Abb.43: Verwendete Meßzellen in Raschigring- und Kugelschüttungen

Das System zur Injektion des Indikators ($1/10$ n HCl) wurde derart abgeändert, daß lediglich die pro Versuch einzuspritzende Menge in die Vorlage gegeben wurde. Dadurch wurde erreicht, daß die Injektionsvorrichtung mit Preßluft kurzzeitig gespült wurde, nachdem die gesamte, je nach Flüssigkeitsdurchsatz unterschiedlich große Menge HCl über den Verteilerstern in die Kolonne gepreßt war. Damit wurde verhindert, daß nach der Injektion noch Spuren des Indikators in die Kolonne gelangen und so eine Verfälschung der Verweilzeitverteilungskurve hervorrufen können. Die Menge des Indikators wurde stets so groß gewählt, daß die je nach Abstand der Meßstelle vom Injektionspunkt verschieden empfindlich eingestellten Meßbrücken in etwa Vollausschlag anzeigten, daß jedoch die z.B. von Chang⁵⁾ angegebene Grenze für die Linearität zwischen Leitfähigkeit und Konzentration nicht überschritten wurde (siehe auch Kap. IV.2.22).

Um das Strömungsverhalten der beiden Phasen an der Meßstelle nicht zu beeinflussen, wurden die Meßzellen den verwendeten Füllkörpern nachgebildet (siehe ⁵⁾ und Abb.43). Bei den Meßstellen für die Kugelschüttung wurden in der ersten Ausführung die Elektroden durch ein Kunststoffgewebe vor dem Zutritt von Gasblasengeschützt. Dadurch wurden zwar die Schwankungen infolge der Begasung auf ein Minimum reduziert, aber die durch das Netz entstandenen Käfige wirkten als schlecht durchströmte Totzonen, in denen Spuren des Indikators längere Zeit hängenblieben. Eine Wiederholung der Meßreihe mit den gleichen Zellen - jedoch ohne Käfig - zeigte eine deutliche Abnahme des Dispersionskoeffizienten infolge des Fehlens dieser vorgetäuschten Totzonen.

Die in der Raschigringschüttung gemessenen Verweilzeitverteilungskurven klangen nur sehr langsam wieder auf den Anfangswert ab. Da dieser "Schwanz" der Verteilungskurve nicht nur durch die Charakteristik der Schüttung sondern auch durch eine Porosität der Füllkörper hervorgerufen werden kann, wurde die Porosität der Steinzeug-Raschigringe mit einem

Quecksilber-Hochdruckporosimeter gemessen. Die Porenradialverteilung ist in Abb.44 dargestellt. Bei der gemessenen Porosität von 4,1% ergibt sich für die ganze Kolonne ein Porenvolumen von 320 cm³. Dieses im Verhältnis zur gesamten Flüssigkeitsmenge geringe Porenvolumen sowie die Ähnlichkeit der Verweilzeitverteilungskurven bei nicht porösen Glaskugeln deutet darauf hin, daß hier die Verweilzeitverteilung nicht von der Porosität der Füllkörper beeinflusst wird.

2.2 Die digitale Datenerfassung

Zur Bestimmung des axialen Dispersionskoeffizienten aus experimentell aufgenommenen Verweilzeitverteilungskurven müssen deren Momente ermittelt werden. Die Berechnung erfolgt numerisch nach:

$$\bar{t} = \frac{\int_0^{\infty} t \cdot c(t) dt}{\int_0^{\infty} c(t) dt} \approx \frac{\sum_{i=1}^{t_e} t \cdot c(t) \cdot \Delta t}{\sum_{i=1}^{t_e} c(t) \cdot \Delta t} = \frac{\sum_{i=1}^{t_e} t \cdot c(t)}{\sum_{i=1}^{t_e} c(t)} \quad (38)$$

$$\sigma_t^2 = \frac{\int_0^{\infty} (t - \bar{t})^2 c(t) dt}{\int_0^{\infty} c(t) dt} = \frac{\int_0^{\infty} t^2 c(t) dt}{\int_0^{\infty} c(t) dt} - \bar{t}^2$$

$$\sigma_t^2 \approx \frac{\sum_{i=1}^{t_e} t^2 \cdot c(t)}{\sum_{i=1}^{t_e} c(t)} - \left(\frac{\sum_{i=1}^{t_e} t \cdot c(t)}{\sum_{i=1}^{t_e} c(t)} \right)^2 \quad (39)$$

Die in den vorangegangenen Arbeiten¹⁻⁵⁾ durchgeführte graphische Ermittlung der $c(t)$ - und t -Werte und die Berechnung der Momente nach den Gleichungen (38) und (39) war mit großem Zeitaufwand verbunden und führte gleichzeitig zu Fehlern durch die zwangsweise groß gewählte Schrittweite Δt .

Im Rahmen dieser Arbeit sollten durch eine Vielzahl an Versuchen statistisch gesicherte Aussagen über den Einfluß der einzelnen Variablen auf den Dispersionskoeffizienten ermöglicht werden. Dazu wurde eine Anlage zur automatischen Erfassung der Meßwerte geplant, um die Berechnung der benötigten Größen auf einem Digitalrechner mit höherer Genauigkeit und in einem vertretbaren Zeitraum durchführen zu können. Da gleichzeitig Erfahrungen mit der für derartige Untersuchungen erstmalig angewendeten digitalen Datenerfassung gesammelt werden sollten^{*)}, wird sie hier etwas ausführlicher beschrieben. (Siehe Blockschaltbild, Abb.45)

Die parallelgeschalteten Meßzellen der drei Meßebenen sind mit den Eingängen von drei Leitfähigkeitsmeßbrücken verbunden. Von einer zentralen Steuereinheit werden die Ausgänge der drei Meßbrücken über Relaiskontakte nacheinander über einen Verstärker auf einen Analog-Digital-Wandler (ADW) geschaltet. Dieser wird nach dem Anschalten der ersten Meßstelle von der Steuereinheit gestartet und nach einer kurzen Umwandlungszeit von 1ms abgefragt. Die im BCD-Code am Ausgang des ADW zur Verfügung stehenden Werte werden zunächst über ein Schieberegister (Serien-Parallel-Umwandlung) einer Decodierschaltung (BCD-Code in 1-aus-10-Code) zugeführt. Danach gelangen die Meßwerte über eine Codierschaltung (1-aus-10-Code in den internationalen Fernschreibcode CCI 2) und einen Ausgangsverstärker an den Lochstreifenstanzer. Mit den Stanz- und Transportimpulsen des in der Steuereinheit enthaltenen Taktgebers erfolgt die Eingabe in den für Start-Stop-Betrieb ausgelegten Streifenlocher. Nach der Ablochung des ersten dreidekadischen Meßwertes wird ein Beizeichen abgelocht, und der Vorgang wiederholt sich nach Umschaltung auf die zweite Meßstelle.

*) In einer weiteren Ausbaustufe ist geplant, die digitale Datenerfassungsanlage als Kopplungsglied zwischen Versuchsapparatur und Prozeßrechner einzusetzen.

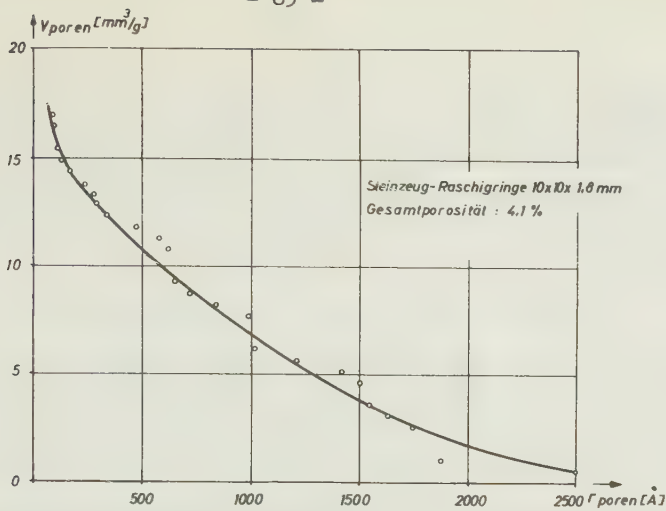


Abb.44: Porengrößenverteilung von Steinzeugraschgringen

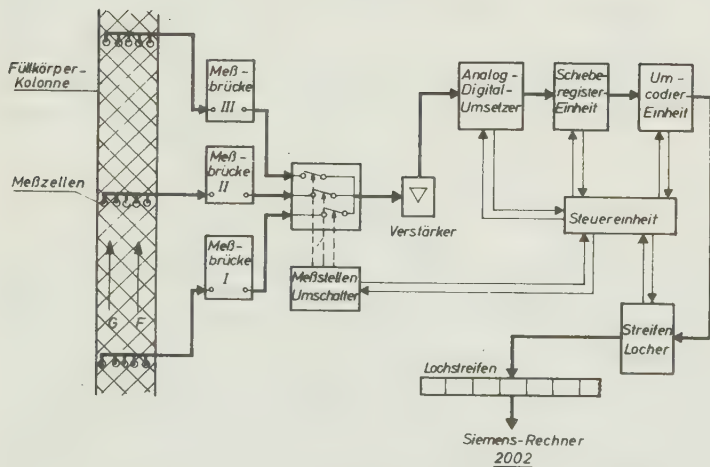


Abb.45: Digitale Datenerfassungsanlage

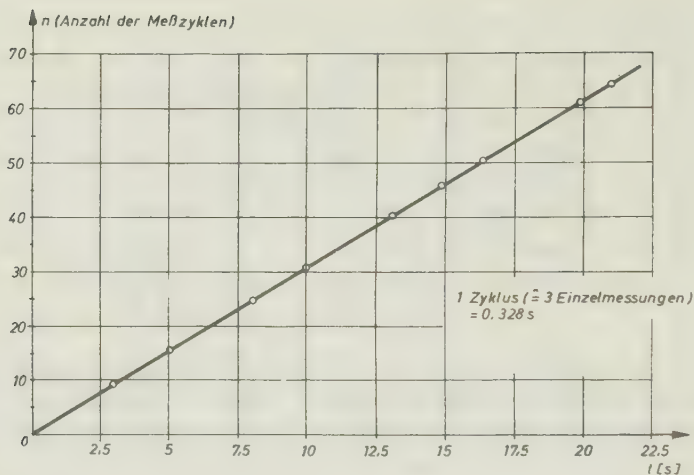


Abb.46: Abfragegeschwindigkeit des Analog-Digital-Wandlers

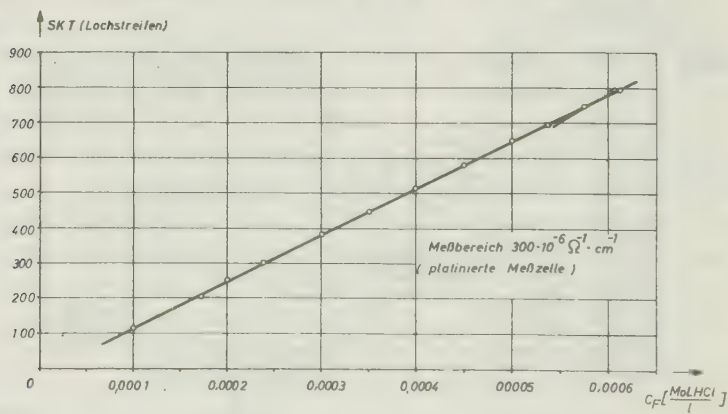


Abb.49: Linearität zwischen Flüssigkeitskonzentration und Lochstreifenausdruck

Die Abfragegeschwindigkeit war mit $1/10$ sec pro Einzelmessung angegeben. Eine Überprüfung durch eigene Messungen (bis zu 200 Einzelmessungen, s. Abb.46) ergab eine Abtastgeschwindigkeit von $0,328$ sec für einen aus drei Einzelmessungen bestehenden Meßzyklus (c_1, c_2, c_3), d.h. $\sim 0,109$ sec pro Einzelmessung.

2.21 Die Handeingabe

Zur Auswertung des Lochstreifens, auf dem die dreistelligen Meßwerte der ersten, zweiten und dritten Meßstelle nacheinander abgelocht sind, war es erforderlich, vor Versuchsbeginn eine Anzahl von Versuchsdaten (Nummer, Datum, geometrische Abmessungen, Durchsätze etc.) abzulochen.

Dazu wurde eine entsprechende elektronische Schaltung entwickelt, mit welcher der für den Rechner erforderliche Vorspann (Wagenrücklauf, Zeilensprung etc., s. Abb.47, Anhang A3) sowie die Versuchsdaten über eine Tastatur eingegeben werden konnten. Der Stanz- und Transportimpuls für den Streifenlocher mußte dazu extern über einen eigenen Impulsgeber erzeugt werden (s. Abb.48, Anhang A3).

2.22 Die Linearität der Anlage

Der Einfluß des Absolutwertes der Konzentration auf das Ergebnis wurde durch die Normierung der Momente (Gl.(38 und (39)) eliminiert. Damit kann die Berechnung der Momente direkt aus den umgesetzten und auf Lochstreifen gespeicherten Zahlenwerten erfolgen, wenn zwischen der Konzentration der flüssigen Phase und dem Lochstreifenausdruck ein linearer Zusammenhang besteht. Zum Nachweis, daß dieser lineare Zusammenhang zwischen Konzentration, Leitfähigkeit, Brückenstrom, ADW und Ausdruck auf dem Lochstreifen erfüllt ist, wurden Flüssigkeiten verschiedener Konzentrationen innerhalb des bei den Versuchen auftretenden Konzentrationsbereiches gemessen. Die Ergebnisse in Abb.49 zeigen, daß die Linearität in dem untersuchten Bereich mit Recht vorausgesetzt werden kann.

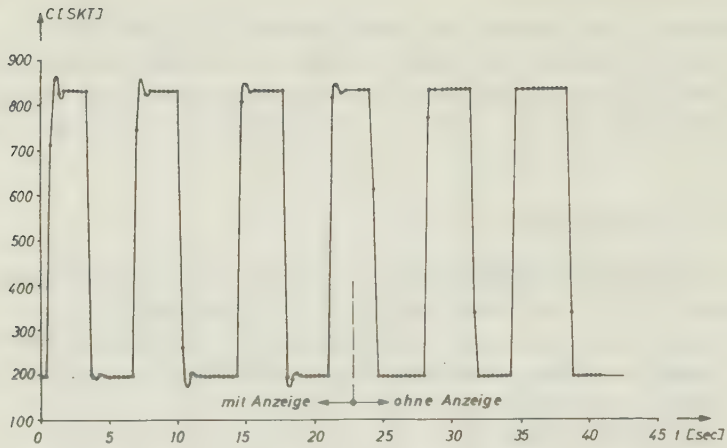


Abb.50 Einstellzeit der Meßeinrichtung

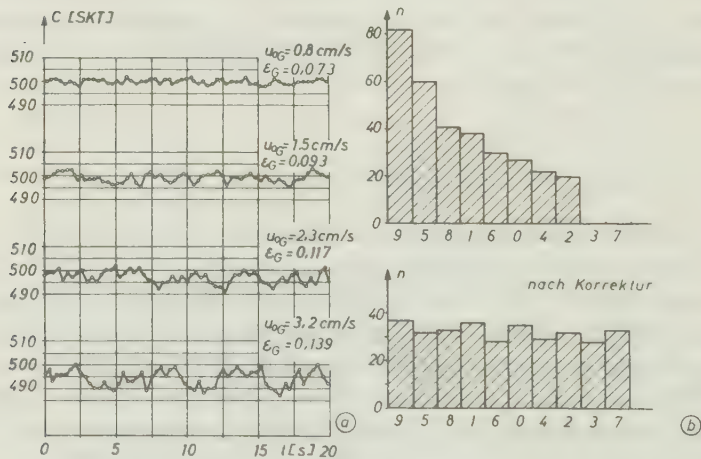


Abb.51: Meßwertschwankung und Ziffernhäufigkeit

2.23 Die Einstellzeit der Anlage

Bei geringer Dispersion der flüssigen Phase, d.h. bei kleinen Strömungsgeschwindigkeiten bzw. an der ersten Meßstelle, kann ein sehr steiler Konzentrationsanstieg erfolgen. Um sicher zu gehen, daß die Einstellzeit der gesamten Datenerfassungsanlage klein genug ist, um auch schnelle Änderungen der Konzentration exakt registrieren zu können, wurden Umschaltversuche durchgeführt. Durch Umschaltung zweier Meßzellen, die in verschiedenen konzentrierte Lösungen eintauchten, wurden Konzentrationssprünge simuliert, die über eine Meßbrücke und einen Kanal des ADW registriert werden konnten. Der Ausdruck des Lochstreifens ist in Abb.50 über der Zeit aufgetragen. Aus der Darstellung geht hervor, daß die Einstellzeit über den gesamten Bereich im Mittel weniger als 0,4 sec beträgt und damit um etwa eine Zehnerpotenz unter der Zeit liegt, die unter Versuchsbedingungen minimal beobachtet wurde. Weiterhin zeigt der Versuch, daß das Anzeigegerät der Meßbrücke keine Verzögerung der Einstellzeit, sondern lediglich ein Überschwingen hervorruft, das aber, verglichen mit den Meßwertschwankungen durch die Begasung der Kolonne, vernachlässigt werden kann.

2.24 Meßwertschwankung und Ziffernhäufigkeit

Trotz der in Kap. 2.1 beschriebenen Form der Meßzellen, die einen Kontakt zwischen Gasblasen und Elektroden verhindern sollten, verursachte die Begasung der Kolonne eine mit wachsendem Gasdurchsatz zunehmende Schwankung der Meßwerte. Diese ist auf den Einfluß der die Meßzelle umgebenden Schüttung zurückzuführen, da ein freies Durchströmen der Meßzelle durch die benachbarten Füllkörper verhindert wird. Abb.51a zeigt die in einem mittleren Konzentrationsbereich aufgenommenen Werte, die bei maximalem Gasdurchsatz etwa $\pm 1,3\%$ um den zeitlichen Mittelwert streuen. Bei 1000 bis 5000 Meßpunkten pro Kurve ist zu vermuten, daß das Ergebnis mit dem zeitlichen Mittel-

wert übereinstimmt^{*)}.

Neben der zunehmenden Schwankung beobachtet man eine Abnahme des zeitlichen Mittelwertes mit wachsendem Gasdurchsatz. Die Abnahme ist auf eine Erhöhung des elektrischen Widerstandes der "Mischphase" zurückzuführen (siehe auch²⁵⁾). Diese Erhöhung resultiert aus der Abnahme des Flüssigkeitsvolumens zwischen den Elektroden infolge der Begasung. Da jedoch zur Auswertung normierte, d.h. von der Absolutkonzentration unabhängige Momente verwendet werden, braucht dieser Effekt nicht berücksichtigt zu werden.

2.3 Die Auswertung der Meßdaten

Der Verlauf der in den drei Meßebenen der Kolonne registrierten Verweilzeitverteilungskurven ist in Abb.52 punktweise aus den auf Lochstreifen gespeicherten Daten für einen Versuch rekonstruiert worden. Von diesen Kurven müssen die durch die Gleichungen (38) und (39) definierten normierten Momente berechnet werden. Die Berechnung erfolgte nach einem ALGOL-Programm (siehe Anhang A4) auf einem Digitalrechner ("Siemens 2002"). Anhand eines Flußdiagramms (Abb.53) sollen hier die wesentlichen Schritte erläutert werden:

Nach dem Datum, der Versuchsnummer und den über die Handeingabe abgelochten Versuchsparametern werden 150 Meßzyklen eingelesen, die während des 50 Sekunden langen Vorlaufes vor dem Markierungszeitpunkt registriert wurden. Aus diesen 3x150 Meßpunkten wird der Streubereich STR und das mittlere Nullniveau (KFAKT) der drei Kurven berechnet, das von den folgenden Meßwerten jeweils subtrahiert wird.

*) Bei der Auswertung der ersten Probeläufe wurde festgestellt, daß die Häufigkeit der letzten Stelle verschieden groß war. Da die Bevorzugung bestimmter Ziffern (s. Abb.51b) vor allem im Bereich kleiner Konzentrationen zu merklichen Fehlern führen kann, mußte die Codiereinheit geändert werden. Nach Korrektur der Decodierschaltung wurde eine in etwa gleichmäßige Ziffernhäufigkeit erreicht.

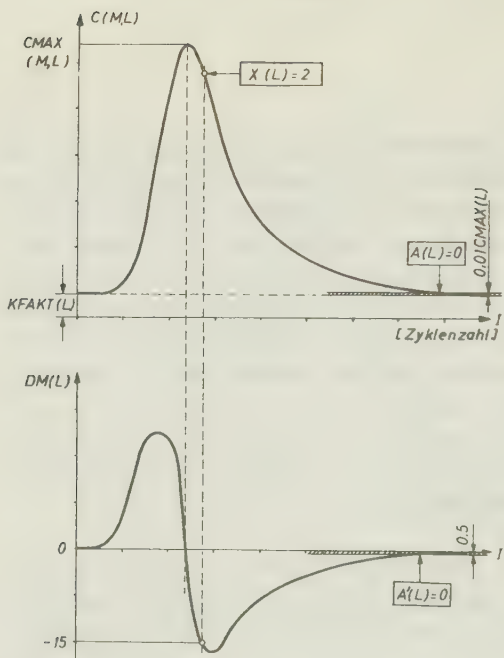


Abb.54: Wirkungsweise der Endkriterien

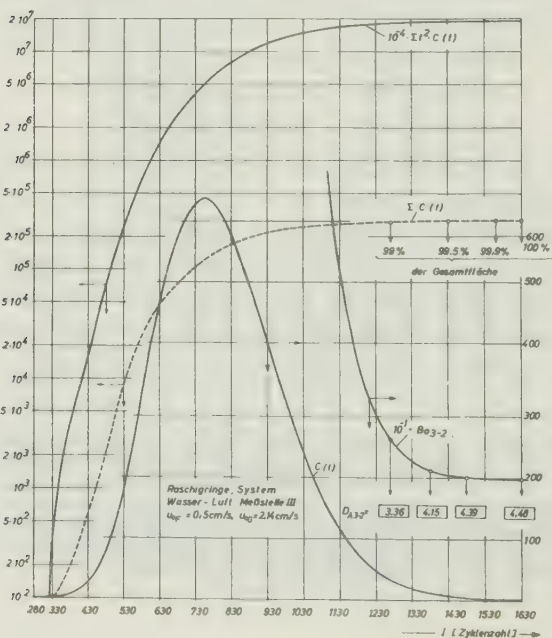


Abb.55: Zeitlicher Verlauf der Konzentration, der Momente und der berechneten Bodensteinzahl

Da der Kernspeicher des Rechners zu klein war, um alle Daten auf einmal einzulesen, mußte die Berechnung schrittweise erfolgen, wobei sich die Schrittweite $M = 1 \div 20$ in bezug auf die Endabschaltung als günstig erwies^{*)}. Aus den ersten 20 Meßzyklen werden in der Prozedur "Mittel"-M1 die Summen S, P und Q sowie der Mittelwert M1 dieser 3×20 Daten berechnet. Nach dem Einlesen der nächsten 20 Zyklen werden wieder deren Summen und der Mittelwert M2 gebildet. Als Maß für die Steigung der Kurven wird schließlich die Differenz zweier aufeinanderfolgender Mittelwerte gebildet ($DM = M2 - M1$), bevor nach dem Ende der Kurve gefragt wird.

In Abb.54 ist die Wirkungsweise des Endkriteriums dargestellt. Wenn durch das Steigungskriterium $DM \leq -15$ ^{**)} festgestellt wird, daß das Maximum der Kurve überschritten ist, wird $x = 2$ gesetzt. Damit werden bei den folgenden Berechnungszyklen zwei unabhängige Kriterien für das Ende der Kurve abgefragt: Das erste ($|DM| \leq 0,5$) sorgt dafür, daß die in geringem Abstand zur Nulllinie fast horizontal auslaufenden Kurven abgeschnitten werden. Der Wert 0,5 entspricht der untersten Grenze des Streubereichs der Daten um die Nulllinie. Das zweite Kriterium, das dann anspricht, wenn der Mittelwert aus 20 Meßwerten kleiner ist als 1% des Maximalwertes ($M \leq 0,01 \cdot C(\text{MAX})$), verhindert die Auswertung negativer Daten und solcher, die unterhalb der Genauigkeit der gesamten Meßeinrichtung um die Nulllinie schwanken.

Mit diesen Kriterien wurde die Reproduzierbarkeit der Versuche gegenüber den Testläufen, bei denen eine feste Schranke am ADW eingestellt wurde, wesentlich verbessert. Daß dennoch

*) In Abb.52 sind die Endpunkte für Mittelwerte aus 10 bis 30 Einzelwerten bei Verwendung des Steigungskriteriums eingezeichnet. Mit n.P. ist der Endpunkt bei Anwendung des im folgenden beschriebenen kombinierten Endkriteriums bezeichnet.

**) Der experimentell bestimmte Wert(-15) ist gerade so groß, daß er auch von sehr langsam abklingenden Kurven unterschritten wird, ohne jedoch bei negativem Driften einer Nulllinie ein Überschreiten des Maximums vorzutäuschen.

durch geringe Änderung der beiden Schranken und damit durch Verschiebung des Endpunktes größere Fehler entstehen können, geht aus dem in Abb.55 dargestellten Verlauf der berechneten Kurven $\Sigma t^2 \cdot c(t)$ und B_{3-2} über der registrierten Verweilzeitverteilungskurve hervor. Setzt man hier die bei $I = 1630$ berechneten Werte gleich 100%, dann sieht man, daß geringfügige Verschiebungen des Endpunktes zu kleineren t -Werten (z.B. von 100% der gesamten Fläche der $c(t)$ -Kurve auf 99%) relativ grose Änderungen des zweiten Moments und damit des D_{AF} -Wertes (von 4.48 auf 3,36 cm²/s) hervorrufen.

Diese Unsicherheit, die bei der Beschreibung von Verteilungskurven durch ihre Momente auftritt, wurde von Aris⁴³⁾ für annähernd normal verteilte Kurven abgeschätzt:

Wird die Integration der Kurve bei $t = 0$ abgebrochen und setzt man das Intervall $\theta - \bar{t} = k' \cdot \sigma'$, wobei σ'^2 die Varianz der zu kurzen Kurve sei, dann kann man für verschiedene Werte von $k' = (0 - \bar{t})/\sigma'$ das Verhältnis der wahren Varianz σ^2 zu σ'^2 berechnen. Die Anwendung dieser Methode auf eine Reihe der hier gemessenen $c(t)$ -Kurven führte für $2,5 < k' < 3,5$ auf Abweichungen von 0,5 - 7% zwischen σ^2 und σ'^2 . Bei stark asymmetrischen Kurven können jedoch je nach Wahl von θ größere Differenzen auftreten, da B_0 trotz minimaler Konzentrationswerte durch das Quadrat hoher t -Werte im zweiten Moment stark beeinflußt wird.

Eine exaktere Berechnung der Momente bei solchen Kurven mit einem sehr langsam abklingenden Ast sollte möglich sein, wenn sich die Verweilzeitverteilungskurve ab einem Wert t_a durch eine Exponentialfunktion approximieren läßt. Edwards und Richardson⁵⁵⁾ fanden bei gasdurchströmten Festbetten, daß die gemessenen Verteilungskurven ab $c_A \approx \frac{1}{6} c_{\max}$ exponentiell nach

$$c^* = c_A \cdot e^{-K(t-t_a)}$$

abklingen. Von dieser Funktion können die Momente analytisch

berechnet werden, wenn man als Integrationsende wiederum eine von der Versuchstechnik abhängende Schranke $t = t_e$ angibt. (In⁵⁵) wird als Schranke $c_e = \frac{1}{30} c_{\max}$ angenommen.)

Damit wird die Verteilungsfunktion in zwei Intervalle

$$1) \quad 0 \leq c < c_A, \quad 0 \leq t < t_a$$

$$2) \quad c_A \leq c^* \leq c_e, \quad t_a \leq t \leq t_e$$

unterteilt, und die Berechnung von

$$\frac{G_t^2}{t^2} = \frac{\int_0^\infty c \cdot t^2 dt \cdot \int_0^\infty c dt}{\left(\int_0^\infty c \cdot t dt \right)^2} - 1$$

erfolgt mit:

$$\begin{aligned} \int_0^\infty c dt &= \sum_0^{t_a} c \cdot \Delta t + \int_{t_a}^{t_e} c^* \cdot e^{-K(t-t_a)} dt \\ \int_0^\infty c \cdot t dt &= \sum_0^{t_a} c \cdot t \cdot \Delta t + \int_{t_a}^{t_e} c^* \cdot t \cdot e^{-K(t-t_a)} dt \\ \int_0^\infty c \cdot t^2 dt &= \sum_0^{t_a} c \cdot t^2 \Delta t + \int_{t_a}^{t_e} c^* \cdot t^2 \cdot e^{-K(t-t_a)} dt \end{aligned}$$

Entnimmt man die bis t_a gebildeten Summen dem Ausdruck des Digitalrechners und addiert dazu die in Abhängigkeit von t_e berechneten Integralwerte, dann kann man den Verlauf von $D_{AF} = f(G_t^2/t^2)$ über t_e darstellen (s. Abb. 57).

Eine größere Zahl der durchgeführten Testversuche wurde in bezug auf eine Approximation des abklingenden Teils der Verteilungskurve durch eine Exponentialfunktion untersucht. Wie das Beispiel in Abb. 56 zeigt, war die Approximation jedoch nur in einem beschränkten Intervall der ausklingenden Kurve möglich, so daß je nach Wahl des Endpunktes eine mehr oder weniger große Differenz zwischen den numerisch bzw. ab t_a analytisch berechneten D_A -Werten entsteht (s. Abb. 57).

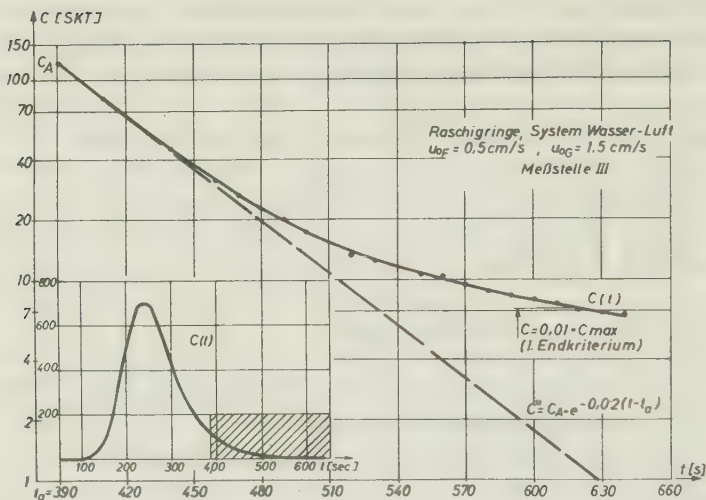


Abb.56: Ersatz des abklingenden Astes der VWZ-Verteilungskurve durch eine Exponentialfunktion

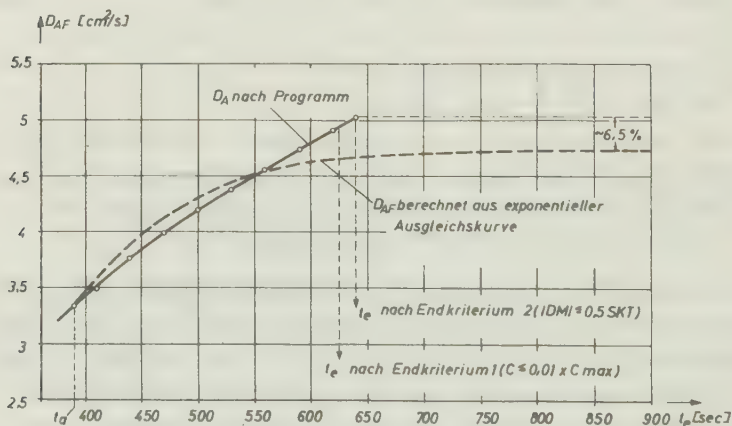


Abb.57: Abhängigkeit des berechneten Dispersionskoeffizienten vom Integrationsende

Wegen der beschriebenen Unsicherheit bei der Festlegung des Integrationsendes wurden jeweils zwei bis drei gleiche Versuche ausgewertet. Durch die Verwendung dreier Meßstellen war es weiterhin möglich, pro Versuch drei D_A -Werte (D_{A3-2} , D_{A2-1} , D_{A3-1}) auszuwerten und deren Mittelwert der weiteren Auswertung zugrunde zu legen, da keine signifikante Abhängigkeit von der Kolonnenhöhe festgestellt wurde. Nimmt man schließlich an, daß die Markierung des Indikators nach einer idealen Stoßfunktion erfolgt, so können - bei Annahme eines in Strömungsrichtung unendlich ausgedehnten Systems - drei weitere D_A -Werte nach ¹⁸⁾ berechnet werden:

$$\frac{\zeta_t^2}{\bar{t}^2} = 2 \frac{D_{AF}}{u_F \cdot x} + 8 \left(\frac{D_{AF}}{u_F \cdot x} \right)^2$$

Ersetzt man in ζ_t^2 und $\bar{t}^2$ die Integrale wieder durch die entsprechenden Summen, dann ist:

$$\frac{u_F \cdot x}{D_{AF}} = \frac{1}{\frac{(\sum t^2 \cdot c) \cdot (\sum c)}{(\sum t \cdot c)^2} - 1} \left\{ 1 + \sqrt{8 \cdot \frac{(\sum t^2 c)(\sum c)}{(\sum t \cdot c)^2} - 7} \right\} \quad (40)$$

Die nach Gleichung (40) ermittelten Werte deckten sich im Mittel mit den nach Gleichung (36) berechneten. Damit erhält man pro Versuch 6 Dispersionskoeffizienten, die zusammen mit den Versuchsparametern und den berechneten mittleren Verweilzeiten und Bodensteinzahlen ausgedrückt werden (s. Anhang A4).

Serie	Versuchs-Nr.	Durchsatz		γ_F [cm ² /s]	Schüttung
		u_{oF} [cm/s]	u_{oG} [cm/s]		
T	1 - 12	0,25/0,5/0,75	0,23/0,87/1,5/ 2,14	0,01	Raschig-R.
2T	1 - 36	0,25/0,5/0,74/ 1,0/1,23/1,48	0,87/1,5/2,14/ 2,78/3,42/0	0,01	Raschig-R.
3T	5 - 12	0,5/0,74	0,23/0,87/1,5/ 2,14	0,01	Raschig-R.
I10/30	7 + 36	0,5/1,48	1,5/3,42	0,01	Raschig-R.
O6	20,24,32,36	1,0/1,48	0,87/3,42	0,01	Raschig-R.
B	0001 - 0015	0,785/1,57/2,36	0/0,236/0,895/ 2,21/3,54	0,01	Blasensäule
T2	1 - 36	0,25/0,5/0,74/ 1,0/1,23/1,48	0/0,87/1,5/2,14/ 2,78/3,42	0,01	Raschig-R.
NÜI-1,4	51 - 59	0,5/1,0/1,48	0,87/2,14/3,42	0,014	Raschig-R.
NÜII-1,4	51 - 59	0,5/1,0/1,48	0,87/2,14/3,42	0,014	Raschig-R.
NÜIII-1,4	51 - 59	0,5/1,0/1,48	0,87/2,14/3,42	0,014	Raschig-R.
NÜ-1,8	2x(61 - 69)	0,5/1,0/1,48	0,87/2,14/3,09	0,018	Raschig-R.
K-N	700 - 749	0,5/1,0/1,48/ 1,97/2,47	0/0,2/0,41/0,81/ 1,0/1,5/2,1/2,55/ 3,15/3,65	0,01	Kugeln
K	2x(810-849)	1,0/1,48/1,97/ 2,47	0/0,2/0,41/0,8/ 1,0/1,5/2,1/2,55/ 3,15/3,65	0,01	Kugeln

Tabelle 6

3. Ergebnisse

Vor Beginn der eigentlichen Meßserien wurde eine Reihe von Testversuchen durchgeführt (s. Tabelle 6). In den Serien T und 2T wurden die Bereiche festgelegt, innerhalb derer eine Variation des Gas- und Flüssigkeitsdurchsatzes möglich war. Während bei der Einphasenströmung die oberen Grenzen für u_{OG} und u_{OF} von der Versuchstechnik her festgelegt waren, ergab sich bei gleichzeitigem Durchsatz von Gas und Flüssigkeit eine obere Grenze, bei der die Füllkörper ausgetragen wurden (Wirbelgrenze). Die Serien 3T bis C6 dienten der Erprobung des Programms, vor allem der Festlegung der Schranken für das Endkriterium.

3.1 Der Dispersionskoeffizient in Blasensäulen

Da die axiale Vermischung der flüssigen Phase in Blasensäulen schon häufig untersucht wurde, sollte zunächst in der Serie B der Dispersionskoeffizient in einer Blasensäule gemessen werden, um die eigene Meß- und Auswertungsmethode mit den Methoden anderer Autoren vergleichen zu können. In Abb. 58 sind die Ergebnisse für verschiedene Flüssigkeitgeschwindigkeiten über dem Gasdurchsatz aufgetragen. Die Meßpunkte sind Mittelwerte der über jeweils drei Meßstrecken erhaltenen Dispersionskoeffizienten. Der Vergleich der eigenen Ergebnisse mit den in Abb. 58 eingezeichneten Meßwerten anderer Autoren zeigt deutlich, daß neben dem Durchsatz von Gas und Flüssigkeit noch andere Größen einen starken Einfluß auf die Vermischung ausüben, so daß ein Vergleich nur bedingt möglich ist. So wird die Vermischung infolge von Zirkulationsströmungen sicher von dem Verhältnis Höhe zu Durchmesser der Kolonne sowie von deren Aufbau (glatte Wand oder aus Schüssen zusammengesetzt) abhängen. Aufgrund der fehlenden Einbauten kann hier auch der Einfluß des Gasverteilers (Filterplatte bzw. Düsenboden mit Düsen verschiedener Durchmesser) auf die Blasenform und -aufstiegs geschwindigkeit und damit auf die Vermischung der flüssigen Phase nicht vernachlässigt werden. Faßt man alle Einflüsse zusammen,

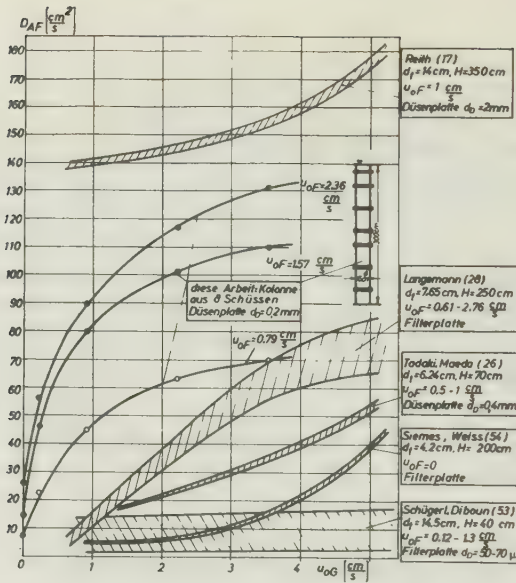


Abb.58: Axialer Dispersionskoeffizient der flüssigen Phase in Blasensäulen

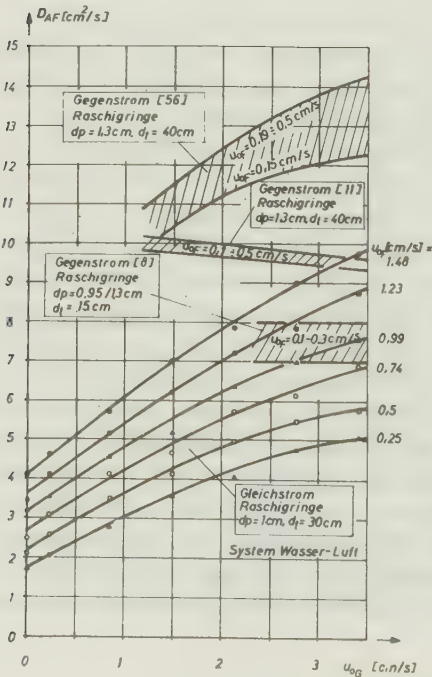


Abb.59: Axialer Dispersionskoeffizient der flüssigen Phase in Raschigringschüttungen

dann zeigen die Ergebnisse, daß der Dispersionskoeffizient mit wachsendem u_{OG} , u_{OF} , H/d_t und $d_{Düse}$ zunimmt. In diesen Trend fügen sich auch die eigenen Messungen gut ein.

3.2 Der Dispersionskoeffizient in Schütttschichten

Alle Messungen der axialen Dispersion der Flüssigkeit in Schütttschichten erfolgten in der Kolonne mit $d_t = 30,5$ cm und $H = 315$ cm (Kolonne A in Abb.1). In den Testreihen und der Serie T2 wurde eine Raschigringschüttung bei $\dot{V}_F = 0,01$ cm²/s untersucht; eine Variation der Zähigkeit erfolgte in den Serien NÜI-1,4 bis NÜ-1,8. Schließlich wurde in den Serien K und K-N (letztere mit Käfigzellen) der Dispersionskoeffizient in einer Kugelschüttung gemessen, um die beiden Extreme (rauhe, hohle Raschigringe aus Steinzeug mit großer Schüttporosität im Gegensatz zu nicht porösen glatten Vollkugeln aus Glas mit kleinem ε) gegenüberstellen zu können.

In Abb.59 sind die eigenen Ergebnisse bei Gleichstrom von Gas und Flüssigkeit durch die Raschigringschüttung zusammen mit vergleichbaren Daten für Gegenstrombetrieb (8,11,56) dargestellt. Während bei Gleichstrom eine deutliche Zunahme des Dispersionskoeffizienten mit steigendem Gas- und Flüssigkeitsdurchsatz beobachtet wird, finden Carlton et al.⁸⁾ und Hoogendorn et al.¹¹⁾ einen vom Gasdurchsatz fast unabhängigen Mischkoeffizienten, obwohl ihre Meßwerte bei Begasung der Kolonne weit über denjenigen liegen, die bei Einphasenströmung gemessen wurden. Da auch die in der Tendenz ähnlich verlaufenden, jedoch etwas höher liegenden Meßwerte von Stemerding⁵⁶⁾ bei $u_{OG} \approx 5$ cm/s ein Maximum erreichen, ist anzunehmen, daß der Bereich, in dem nach anfänglich starker Erhöhung der Vermischung mit zunehmender Gasbelastung der Dispersionskoeffizient nicht weiter zunimmt; im Gegenstrombetrieb früher erreicht wird als im Gleichstromverfahren.

Diese zunächst starke Zunahme von D_{AF} mit wachsendem Gasdurchsatz und der Übergang in einen von u_{OG} unabhängigen Bereich

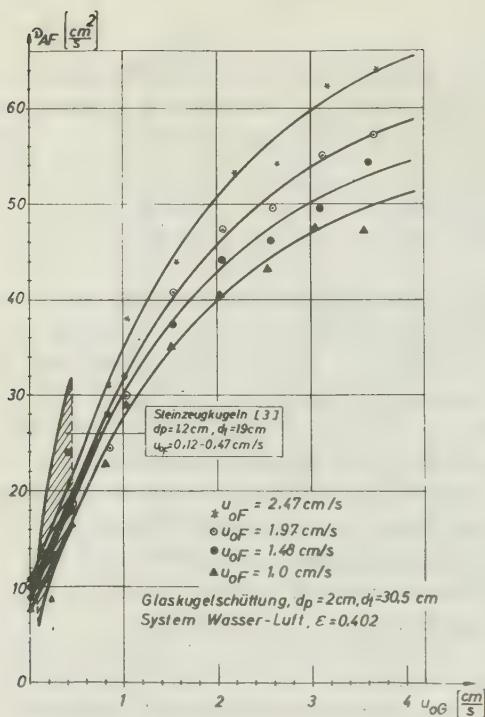
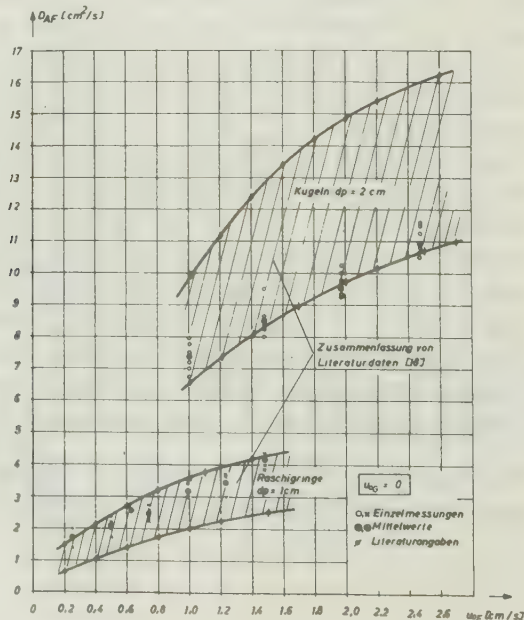


Abb.60:

Axialer Dispersionskoeffizient der flüssigen Phase in Kugelschüttungen

Abb.61:

Axialer Dispersionskoeffizient bei einphasiger Flüssigkeitsströmung durch Schütttschichten



ist bei der hier untersuchten Glaskugelschüttung (s. Abb. 60) besonders ausgeprägt. Insgesamt liegen die Dispersionskoeffizienten in der Kugelschüttung wesentlich höher als in der Raschigringschüttung. Dies ist darauf zurückzuführen, daß bei gleichen Durchsätzen die effektiven Geschwindigkeiten u_F und u_G (siehe auch Abb. 25) wegen der kleineren Schüttporosität ($\epsilon = 0,402$ gegenüber $0,67$) höher sind und weil Zirkulationsströmungen in einer Schüttung aus großen, glatten Kugeln offensichtlich weniger gedämpft werden. Die im Bereich von $u_{OG} = 0,06$ bis $0,41$ cm/s von Bub³⁾ in einer Kugelschüttung ($d_p = 1,2$ cm) gemessenen D_{AF} -Werte nehmen ebenfalls mit wachsendem Gasdurchsatz stark zu, zeigen jedoch keine eindeutige Abhängigkeit von der Flüssigkeitsbelastung.

Trägt man die bei Einphasenströmung ($u_{OG} = 0$) gemessenen Dispersionskoeffizienten (Ordinatenwerte aus Abb. 59 und 60) über den Flüssigkeitsdurchsatz auf, dann lassen sich diese Werte mit den zahlreich durchgeführten Messungen an einphasig durchströmten Schütttschichten vergleichen. Überträgt man das von Levenspiel¹⁸⁾ aus Literaturdaten zusammengestellte Diagramm $D_{AF} \cdot \epsilon / u_F \cdot d_p = f(u_F \cdot d_p / \nu_F)$ mit den vorliegenden Werten ϵ , d_p und ν_F , so ergeben sich die in Abb. 61 eingezeichneten Bereiche für D_{AF} als Funktion von u_{OF} , in denen mit wenigen Ausnahmen auch die eigenen Meßpunkte liegen.

Die bei höherer Zähigkeit in einer Raschigringschüttung gemessenen Dispersionskoeffizienten sind in Abb. 62 wiederum über u_{OG} mit u_{OF} als Parameter aufgetragen. Der Vergleich mit den bei $\nu_F = 0,01$ cm²/s gemessenen Werten zeigt, daß die relativ geringe Erhöhung der Zähigkeit eine ziemlich starke Zunahme des Dispersionskoeffizienten bewirkt. Diese Zunahme ist vor allem darauf zurückzuführen, daß der Austausch mit Totzonen bei höherer Zähigkeit langsamer erfolgt. Daraus resultiert eine Verbreiterung der Verweilzeitverteilung und damit eine zahlenmäßige Erhöhung des Dispersionskoeffizienten. Berücksichtigt man noch die Möglichkeit, daß sich wegen der kleineren Reynoldszahl nicht ebene Strömungsprofile ausbilden können, so sind es hier vor allem die oben schon genannten Mechanismen "Austausch mit stagnierenden Zonen" und "Vermischung infolge unterschiedlicher Geschwindigkeiten", die den Dispersionskoeffizienten bestimmen.

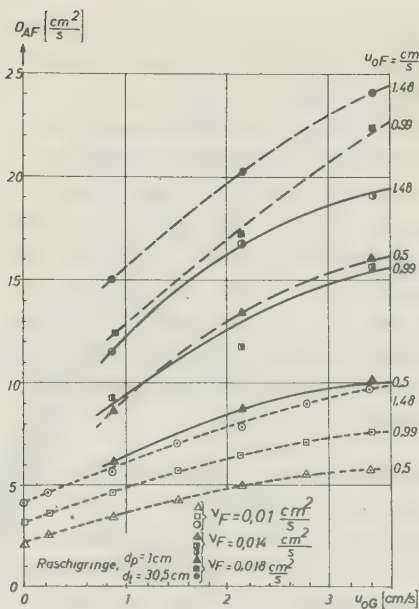


Abb.62:

Einfluß der Zähigkeit auf die Axialdispersion der flüssigen Phase

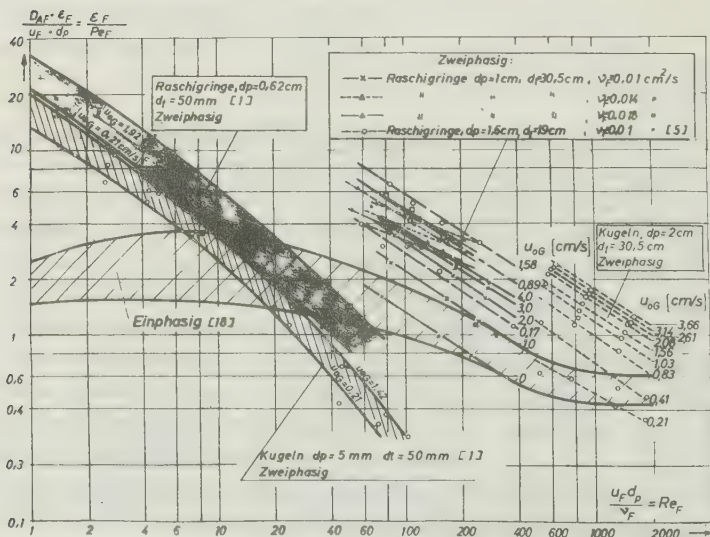


Abb.63: Axialdispersion der flüssigen Phase in ein- und zweiphasig durchströmten Schütttschichten

3.3 Die Korrelation der Meßergebnisse

Das Ziel der Messungen sollte es sein, eine allgemeingültige Beziehung für den Dispersionskoeffizienten in Abhängigkeit aller signifikanten Einflußgrößen aufzustellen bzw. den Zusammenhang in Form einer Kenngrößengleichung anzugeben, um eine Übertragung der Ergebnisse aus dem Labormaßstab in technische Dimensionen zu ermöglichen. Für den Fall der Einphasenströmung von Flüssigkeiten durch Schütttschichten konnten von Bischoff⁵⁰⁾ alle veröffentlichten Meßwerte durch eine Darstellung

$$\varepsilon/Pe_F = f(Re_F) \text{ mit } Pe_F = \frac{u_F \cdot d_p}{D_{AF}} \text{ und } Re_F = \frac{u_F \cdot d_p}{\nu_F}$$

zusammengefaßt werden. Ersetzt man hierin die Porosität ε durch den Volumenanteil der Flüssigphase ε_F , dann lassen sich die bei Zweiphasenströmung gemessenen Werte für $\varepsilon_F \cdot D_{AF} / u_F \cdot d_p$ in das gleiche Diagramm (s. Abb. 63) eintragen. Für einphasige Strömung bleibt ε/Pe_F bis zu $Re_F \approx 20$ konstant innerhalb eines Bereiches von 1,5 bis 3,5 und fällt dann mit zunehmender Turbulenz bis auf etwa 0,5. Die Breite des eingezeichneten Bereiches ist auf Meßfehler sowie vor allem auf den hier nicht erfaßten Einfluß der verschiedenen Form und Oberflächenbeschaffenheit der Füllkörper zurückzuführen. Die eigenen sowie die von Weber¹⁾ und Chang⁵⁾ in Aufstromkolonnen gemessenen Werte^{*)} zeigen einen ähnlichen Verlauf, liegen aber deutlich oberhalb des Einphasenbereiches und sind entsprechend dem unterschiedlichen Gasdurchsatz aufgefächert. Für eine Korrelation müssen also neben den bei der Einphasenströmung berücksichtigten Variablen u_F , ε , d_p und ν_F noch weitere Einflußgrößen erfaßt werden.

Von den denkbaren, die Vermischung beeinflussenden Grundgrößen u_{oF} , u_{oF} , ν_F , ν_G , ζ_F , ζ_F , ζ_G , d_p , d_t , ε , g und H wurden bislang (mit auswertbaren Ergebnissen) lediglich u_{oF} , u_{oG} , ν_F ,

*) Die nach einer noch sehr einfachen Methode von Weber gemessenen und ausgewerteten Daten weichen zum Teil erheblich von dem zu erwartenden Trend ab.

d_p , ε und H variiert. Von diesen wiederum konnte aufgrund eines Signifikanztestes⁴⁾ die Meßstreckenlänge, d.h. die Kolonnenhöhe H als nichtsignifikant eliminiert werden.

Unter Vernachlässigung des Einflusses des Gasdurchsatzes wurden von Kunugita et al.¹²⁾ durch Dimensionsanalyse aus den verbleibenden 5 Größen D_{AF} , $u_F (= u_{oF}/\varepsilon_F)$, d_p , v_F und g drei dimensionslose Kenngrößen Pe_F , Ga_F und Re_F ermittelt. Man konnte für den Fall des Gegenstromverfahrens die Meßergebnisse durch ein Potenzprodukt

$$Pe_F = 1,425 \cdot Ga_F^{-0.333} \cdot Re_F^{0.777}$$

beschreiben. Darin bedeutet

$$Ga_F = \frac{g \cdot d_p^3}{v_F^2}$$

die mit dem Füllkörperdurchmesser gebildete Galileische Kennzahl.

Weber¹⁾ gab für die in einer Aufstromkolonne ($d_t = 5$ cm, $H = 96$ cm) gemessenen Werte folgende Beziehung an:

$$Pe_F = K \cdot \left(\frac{u_F}{u_G} \right)^m \cdot Re_F \cdot Sc_F$$

Darin bedeutet $Sc_F = \frac{v_F}{D_M}$ die Schmidt'sche Kennzahl; für K und m sind je nach Füllkörperart verschiedene Zahlenwerte einzusetzen.

Schließlich wurde von Bub³⁾ nach einer Dimensionsanalyse aller Einflußgrößen einschließlich der abgeleiteten Größe Δp ein Satz von 8 Kenngrößen ermittelt. Durch Verknüpfung als Potenzprodukt wurde eine Regressionsgleichung aufgestellt, deren Koeffizienten durch eine schrittweise multiple Regression bestimmt wurden. Mit der erhaltenen Gleichung:

$$\frac{D_{AF}}{F} = 5,48 \cdot 10^{-6} \cdot Eu_F^{0.244} \cdot Re_{oF}^{2.95} \cdot Fr_F^{-1.02} \cdot \xi_F^{3.35} \cdot (d_t/d_p) \cdot (H/d_p)^{0.025} \cdot \left(\frac{u_{oF}}{u_{oG}} \right)^{-0.426}$$

konnten die in drei verschiedenen Aufstromkolonnen^{1,2,3)} gemessenen Werte mit einer mittleren Abweichung von 21,3% beschrieben werden. In der Gleichung bedeutet $Eu_F = \frac{\Delta p}{u_F^2 \cdot S_F}$ die Euler'sche Kennzahl und $Fr_F = \frac{u_F^2}{d_p \cdot g}$ die mit dem Füllkörperdurchmesser gebildete Froudesche Kennzahl.

Alle angegebenen Bestimmungsgleichungen sowie auch die von Chang⁵⁾ gewählte Darstellung

$$1/Pe_F = f(Re_F/\varepsilon_G \cdot d_p^{3,3})$$

haben neben den noch relativ hohen Abweichungen den Nachteil, daß sie die Kenntnis der effektiven Strömungsgeschwindigkeiten voraussetzen. Diese sind aber keine a priori bekannten Grundgrößen, sondern müssen über den Volumenanteil der Phasen bzw. mit Hilfe von Druckkorrekturfaktoren berechnet werden. Es erscheint daher sinnvoll, direkt von den Grundgrößen auszugehen.

Berücksichtigt man als Maß für die geometrische Form der Füllkörper noch deren spezifische Oberfläche O_V , dann können in Analogie zu den bisher angegebenen Beziehungen vier dimensionslose, aus den in dieser Arbeit variierten Grundgrößen aufgebaute Kennzahlen zur Beschreibung der Vermischung verwendet werden:

$$\frac{Pe_{oF}}{\varepsilon} = \frac{u_{oF} \cdot d_p}{\varepsilon \cdot D_{AF}} \quad , \quad Re_{oF} = \frac{u_{oF}}{O_V(1-\varepsilon)V_F}$$

$$Ga_F = \frac{g \cdot d_p^3}{\sqrt{2}} \quad , \quad \left(\frac{u_{oF}}{u_{oG}}\right)$$

Bei Verknüpfung der Kenngrößen als Potenzprodukt wird:

$$Pe_{oF}/\varepsilon = K \cdot Re_{oF}^a \cdot Ga_F^b \cdot \left(\frac{u_{oF}}{u_{oG}}\right)^c \quad (41)$$

Die Parameter dieser Regressionsgleichung wurden, zunächst für Kugel- bzw. Raschigringschüttungen getrennt, mit Hilfe eines von Marquardt⁵⁷⁾ aufgestellten Programms ("least-squares Estimation of nonlinear Parameters") bestimmt. Dabei ergab sich (s. Abb. 64) für die Raschigringschüttung bei verschiedenen Zähigkeiten der Flüssigphase

$$\frac{Pe_{oF}}{\varepsilon} = 1,03 \cdot 10^{-6} \cdot Re_{oF}^{0.272} \cdot Ga_F^{0.732} \cdot \left(\frac{u_{oF}}{u_{oG}}\right)^{0.271} \quad (42)$$

mit einer Standardabweichung von $s = 0,01526$ bzw. einer mittleren Abweichung von ca. 7%.

Die in der Kugelschüttung gemessenen Daten ließen sich durch

$$\frac{Pe_{oF}}{\varepsilon} = 7,45 \cdot 10^{-6} \cdot Re_{oF}^{0.094} \cdot Ga_F^{0.54} \cdot \left(\frac{u_{oF}}{u_{oG}}\right)^{0.577} \quad (43)$$

mit einer Standardabweichung von $s = 0,0377$ bzw. einer mittleren Abweichung von 10% beschreiben.

Die Anwendung von Gleichung (41) auf alle vorliegenden Meßwerte einschließlich der von Chang⁵⁾ in einer Raschigringschüttung ($d_p = 1,6$ cm, $d_t = 19$ cm) gemessenen führte jedoch zu einer deutlich größeren mittleren Abweichung, die wahrscheinlich auf die Art der Kombination der verschiedenen Grundgrößen in den gewählten Kennzahlen zurückzuführen ist. Daher wurden zunächst die signifikanten Grundgrößen (u_{oG} , u_{oF} , Q_V und V_F) direkt mit dem Dispersionskoeffizienten korreliert. Daraus resultierte eine Regressionsgleichung

$$D_{AF} = 2,94 \cdot 10^4 \cdot u_{oG}^{0.47} \cdot u_{oF}^{0.258} \cdot V_F^{1.326} \cdot Q_V^{-0.803*}) \quad (44)$$

mit der alle vorliegenden Meßwerte mit einer mittleren Abweichung von 7% beschrieben werden konnten. Bezieht man die Porosität ε und den molekularen Diffusionskoeffizienten D_M

*) Alle Größen in den Dimensionen [cm] und [s].

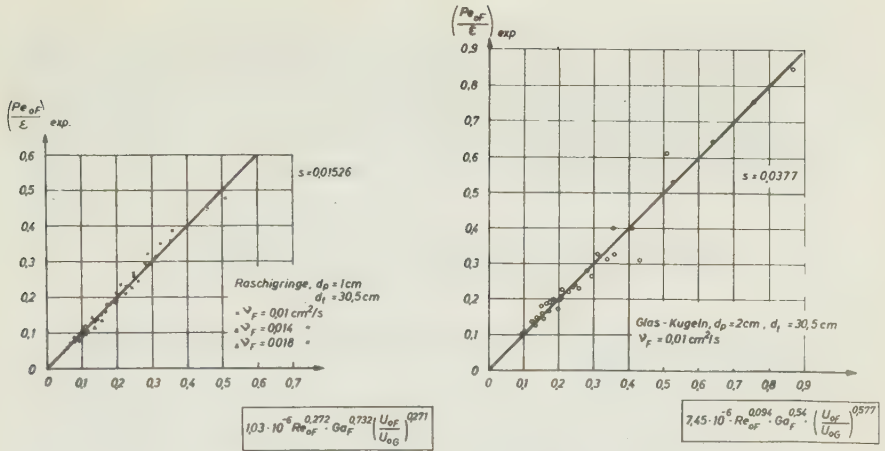


Abb.64: Korrelation der Axialdispersion der flüssigen Phase in Raschiring- und Kugelschüttungen

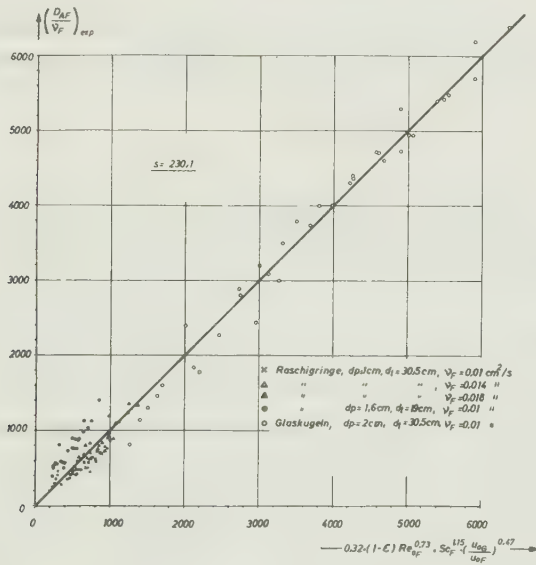


Abb.65: Korrelation des axialen Dispersionskoeffizienten der flüssigen Phase in Aufstromkolonnen

in die Regression mit ein und berücksichtigt die in Gl.(44) angegebenen Exponenten, dann kann schließlich aus den 7 Grundgrößen (bei zwei Grunddimensionen) ein Satz von 5 dimensionslosen Kenngrößen abgeleitet und zu folgender Regressionsgleichung verknüpft werden:

$$\frac{D_{AF}}{V_F} = K \cdot Re_{OF}^a \cdot Sc_F^b \cdot \left(\frac{u_{OG}}{u_{OF}}\right)^c \cdot (1-\varepsilon)^d$$

Unter Einbeziehung aller auswertbaren Meßdaten ergab die Regressionsanalyse:

$$\frac{D_{AF}}{V_F} = 0,32(1-\varepsilon)Re_{OF}^{0,73} \cdot Sc_F^{1,15} \cdot \left(\frac{u_{OG}}{u_{OF}}\right)^{0,47} \quad (45)$$

Die mittlere Standardabweichung aller gemessenen von den nach Gl.(45) berechneten Werten beträgt $s = 230$ (s.Abb.65). Das bedeutet, daß der Dispersionskoeffizient in dem untersuchten Bereich mit einer mittleren Abweichung von ca. 7.4% vorausberechnet werden kann.

4. Der Einfluß der Axialdispersion auf den Umsatz bzw. Austauschgrad

4.1 Der Einfluß auf den Umsatz in einem Schütttschichtreaktor

Während die radiale Vermischung der strömenden Phasen einen Konzentrationsausgleich über den Querschnitt und damit eine Annäherung an die ideale Pfropfenströmung bewirkt, vermindert die axiale Dispersion den Umsatz gegenüber dem, der unter der Annahme idealer Pfropfenströmung berechnet wird. Das liegt daran, daß die Konzentration der reagierenden Ausgangskomponenten durch die entstehenden Produkte ständig verdünnt wird und eine gewisse Menge der noch nicht reagierten Ausgangskomponenten den Reaktor vor der aus $V_R/\dot{q}$ berechneten Verweil-

zeit verläßt. Für einphasige Strömung und einfache Reaktionen kann die Abweichung des realen Reaktors von dem idealen "plug-flow" Reaktor berechnet werden⁶²⁾. Bei Anwendung des Dispersionsmodells lautet die Materialbilanz mit den in Kap. 1.3 angegebenen Voraussetzungen für stationären Betrieb und im Falle einer chemischen Reaktion

$$u \cdot \frac{dc}{dx} - D_A \cdot \frac{d^2c}{dx^2} + r = 0.$$

Die Lösung dieser Bilanzgleichung ist graphisch für Reaktionen erster und zweiter Ordnung^{*)} in der Form dargestellt, daß für verschiedene Werte von $\frac{1}{Bo} = \frac{D_A}{u \cdot H}$ und $Da_I = k_r \cdot \tau \cdot c_o^{n-1}$ das zur Erzielung des gleichen Umsatzes benötigte Reaktionsvolumen im Vergleich zum Volumen eines idealen Strömungsrohres abgelesen werden kann. Die Anwendung des Diagrammes auf die flüssige Phase der hier untersuchten zweiphasig durchströmten Kugelschüttung zeigt, daß selbst bei extrem hohen Umsätzen und den höchsten hier gemessenen Werten für D_{AF}/u_{FH} ($=0,025$) kaum ablesbare Abweichungen von idealer Pfropfenströmung auftreten.

Dieses dem Strömungsrohr ähnliche Verhalten einer Füllkörperschüttung hat zur Folge, daß es in bestimmten Fällen wirtschaftlicher ist, statt eines Rohrreaktors einen Schütttschichtreaktor zu wählen, da dessen Kosten pro Reaktionsvolumeneinheit bei Verwendung von Füllkörpern mit hoher Schüttporosität wesentlich niedriger sind⁶⁰⁾.

Für den Fall einer nach erster Ordnung ablaufenden Homogenreaktion wurden von Bauer et al.⁶⁰⁾ verschiedene einphasig durchströmte Reaktortypen auf ihre Wirtschaftlichkeit hin untersucht. Dazu wurde nach Lösung der Materialbilanzgleichung

$$D_{AF} \cdot \frac{d^2c_A}{dx^2} - u_F \cdot \frac{dc_A}{dx} - k_r \cdot c_A = 0 \quad (k_r = \frac{1}{h})$$

*) Bei Reaktionen nullter Ordnung hat die Vermischung keinen Einfluß auf den Umsatz.

der Restanteil c_A/c_{A0} als Funktion der Verweilzeit für Strömungsrohr, Rührkessel und verschiedene Füllkörperschüttungen berechnet, indem für D_{AF} die in der Literatur angegebenen Werte bei einphasiger Strömung eingesetzt wurden. Rechnet man das von Bauer⁶⁰⁾ angegebene Diagramm $c_A/c_{A0} = f(\tau)$ derart um, daß jeweils das Verhältnis des Umsatzes $X_A = 1 - c_A/c_{A0}$ im Strömungsrohr zu dem im Schütttschichtreaktor gebildet wird, so ergibt sich der in Abb.66 dargestellte Verlauf von

$$\eta_r = \frac{X_{A,Disp.}}{X_{A,Plug}}$$

über $V_R/\dot{q}_F = H \cdot \varepsilon / u_{OF}$. Man erkennt neben der insgesamt geringen Abweichung (hier maximal 16%), daß sich der Schütttschichtreaktor mit zunehmender Kolonnenhöhe bzw. abnehmendem Durchsatz dem idealen Rohrreaktor immer mehr annähert.

Die axiale Vermischung kann sich jedoch dann nachteiliger auswirken, wenn es sich um komplexe Reaktionen handelt. So wird z.B. bei Folgereaktionen sowohl der maximale Umsatz an erwünschtem Zwischenprodukt verringert als auch die optimale Verweilzeit zur Erzielung des maximalen Umsatzes vergrößert⁵⁹⁾. Das bedeutet, daß der Durchsatz verringert oder der Reaktor vergrößert werden muß, um eine hohe Selektivität zu erreichen.

Der Einfluß der Dispersion auf den Umsatz in zweiphasig durchströmten Reaktoren mit axialer Vermischung beider Phasen sollte infolge der zusätzlichen Gasdispersion^{*)} größer sein als bei einphasiger Strömung. Es sind jedoch bisher weder experimentelle noch theoretische Untersuchungen solcher Systeme bekannt geworden.

*) Die Vermischung der Gasphase hat natürlich nur dann einen Einfluß auf den Umsatz, wenn die Gasphase aus mindestens zwei Komponenten besteht, von denen eine oder mehrere durch Reaktion entstehen oder verschwinden.

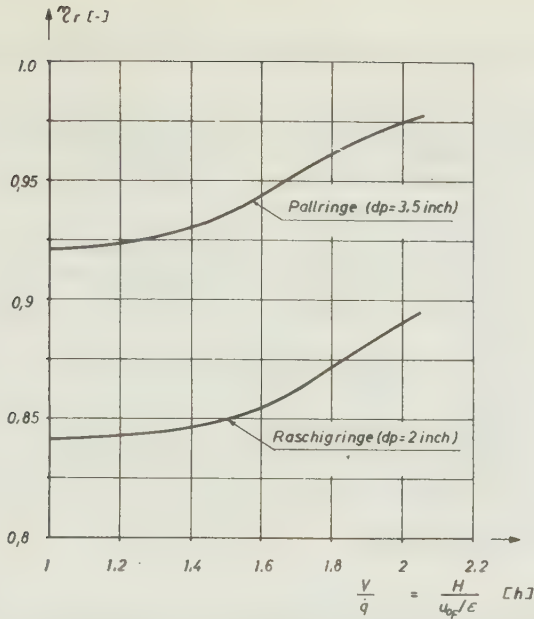


Abb.66: Verminderung des Umsatzes infolge Axialdispersion in einem einphasig durchströmten Schüttichtreaktor

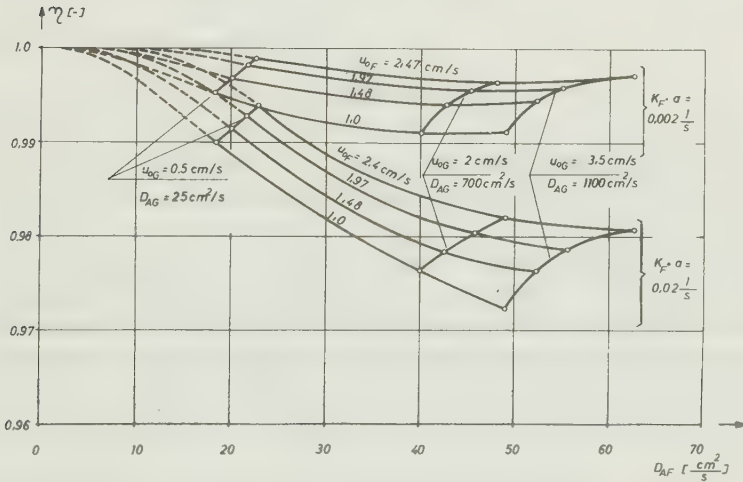


Abb.67: Verminderung des Austauschgrades durch die Axialdispersion bei der CO_2 -Absorption in einer Aufstromkolonne

4.2 Der Einfluß auf den Austauschgrad einer Absorptionskolonne

Um den Einfluß der Vermischung beider Phasen auf den Austauschgrad in der untersuchten Kolonne (A) mit einer Glaskugelschüttung zahlenmäßig angeben zu können, sei als Modellfall die Absorption von CO_2 in Wasser betrachtet³⁶⁾. Legt man wieder das Dispersionsmodell zugrunde, so lauten die Materialbilanzgleichungen für beide Phasen im stationären Betrieb:

$$D_{AF} \cdot \frac{d^2 c_F}{dx^2} - u_F \cdot \frac{dc_F}{dx} + K_F a (c_G/H_T - c_F) = 0 \quad (46)$$

$$D_{AG} \cdot \frac{d^2 c_G}{dx^2} - u_G \cdot \frac{dc_G}{dx} - K_F a (c_G/H_T - c_F) = 0 \quad (47)$$

Mit den Randbedingungen:

$$x = 0^+ : \quad D_{AF} \cdot \frac{dc_F}{dx} = (c_F - c_{F0}) u_F \quad (\text{mit } c_{F0}=0)$$

$$-D_{AG} \cdot \frac{dc_G}{dx} = (c_G - c_{G0}) u_G$$

$$x = H^- : \quad \frac{dc_F}{dx} = 0 ; \quad \frac{dc_G}{dx} = 0$$

ist dieses System zweier gekoppelter linearer Differentialgleichungen geschlossen lösbar. Unter Verwendung der für je eine Kombination von u_F und u_G gemessenen Dispersionskoeffizienten D_{AF} und D_{AG} wurden die Endkonzentrationen $c_{F,G}(x=H)$ nach einem bei Böckes³⁶⁾ beschriebenen Programm berechnet. Um die Abweichung von den Endkonzentrationen, die sich bei idealer Pfropfenströmung einstellen würden, angeben zu können, muß Gleichung (46) und (47) auch für $D_{AF} = D_{AG} = 0$ bei jeweils gleichen Durchsätzen und Reaktorabmessungen gelöst werden.

Damit kann das Verhältnis

$$\eta = \frac{c_{F(x=H)Disp.}}{c_{F(x=H)plug}} = 1 - \frac{c_{F(x=H)plug} - c_{F(x=H)Disp.}}{c_{F(x=H)plug}}$$

als Maß für die Verminderung des Austauschgrades infolge Dispersion für verschiedene Werte des volumetrischen Stoffaustauschkoeffizienten $K_F \cdot a$ berechnet werden ^{*)}.

In Abb. 67 ist η für verschiedene Gas- und Flüssigkeitsdurchsätze über dem gemessenen Dispersionskoeffizienten der flüssigen Phase aufgetragen. Neben der insgesamt geringen Abweichung vom Verhalten eines idealen Strömungsrohres erkennt man eine deutliche Abnahme von η mit wachsendem Gasdurchsatz, die auf die gleichzeitige Zunahme von D_{AF} und D_{AG} zurückzuführen ist.

Obwohl mit wachsendem Flüssigkeitsdurchsatz die Vermischung (bei $u_{OG} = \text{const}$) zunimmt, wird die Abweichung vom idealen Verhalten geringer, weil u_F schneller wächst als D_{AF} und weil damit die für die Abweichung von 'plug flow' charakteristische Bodensteinzahl $u_F \cdot H / D_{AF}$ größer wird ($u_F \cdot H / D_{AF} \rightarrow \infty$ entspricht idealer Pfropfenströmung).

Ferner erkennt man eine Abhängigkeit von dem Stoffaustauschkoeffizienten $K_F \cdot a$. Variiert man diesen über einen großen Bereich, so ergibt sich der in Abb. 68a dargestellte Verlauf von η über $K_F \cdot a$ für vier Durchsatzkombinationen der untersuchten Kolonne. Aus der Darstellung wird deutlich, daß nur in einem bestimmten Bereich von $K_F \cdot a$ eine Abweichung gegenüber idealer Pfropfenströmung auftritt. Bei sehr großen volumetrischen Stoffaustauschkoeffizienten genügen selbst sehr geringe Konzentrationsdifferenzen, wie sie zum Beispiel bei intensiver Vermischung in beiden Phasen auftreten, um den gleichen Austauschgrad wie bei idealer Pfropfenströmung zu erzielen. Bei sehr

^{*)}Der Henrykoeffizient H_T für das System CO_2 -Wasser beträgt bei 20°C : 1,124 mg CO_2 in Luft/mg CO_2 in Wasser ³⁶⁾.

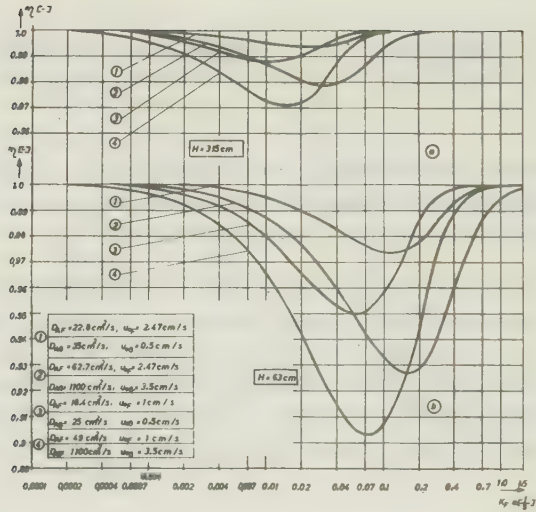


Abb. 68: Verminderung des Austauschgrades durch die Axialdispersion in Abhängigkeit vom volumetrischen Stoffaustauschkoeffizienten

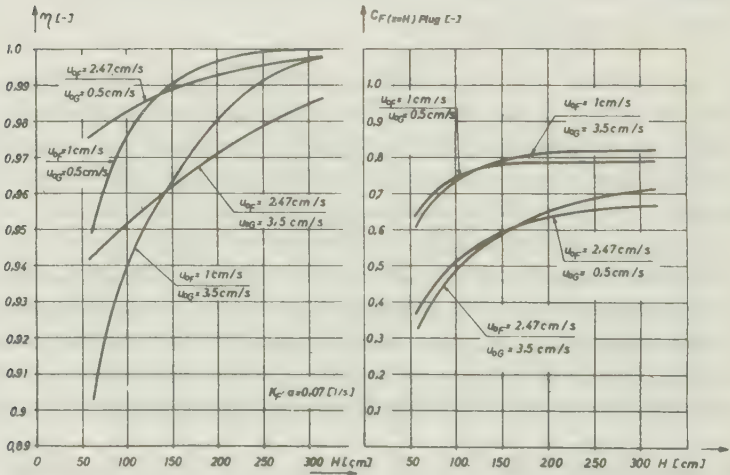


Abb. 69: Einfluß der Kolonnenhöhe auf die Verminderung des Austauschgrades durch die Axialdispersion

geringen $K_F \cdot a$ -Werten dagegen wird der Stoffaustausch auch im idealen Strömungsrohr trotz hoher Konzentrationsdifferenzen so klein, daß schließlich der durch die Vermischung hervorgerufene Unterschied zwischen realem und idealem Fall verschwindet. Insgesamt liegt η bei allen Kombinationen von u_{OG} und u_{OF} über 0,97, d.h. die Abweichungen sind geringer als 3%.

Etwas stärker wirkt sich der Einfluß der Vermischung dann aus, wenn man zu kürzeren Kolonnen übergeht. Abb.69 zeigt, wie die Endkonzentration im idealen Strömungsrohr mit abnehmender Kolonnenhöhe langsamer abnimmt als die Endkonzentration in der realen Kolonne, so daß ebenfalls abnimmt. (Eine Verminderung von H bei konstantem u_F und D_{AF} bedeutet eine Abnahme von $Bo_F = \frac{u_F \cdot H}{D_{AF}}$, d.h. zunehmende Abweichung von "plug flow".)

Der auf der rechten Seite der Abb.69 eingezeichnete Verlauf der Endkonzentration der flüssigen Phase, die unter Annahme eines idealen Strömungsrohres berechnet wurden, zeigt jedoch, daß es unwirtschaftlich wäre, im Falle der CO_2 -Absorption eine z.B. nur 70 cm hohe Kolonne einzusetzen, obwohl man bei Verwendung einer 2 m hohen Kolonne den Austauschgrad noch wesentlich verbessern könnte.

Bei der Auslegung von Schütttschichtreaktoren treten jedoch mitunter Fälle auf, bei denen die Verweilzeit und damit die Länge ^{*)} des Reaktors (z.B. zur Erzielung hoher Selektivität bei Folgereaktionen) sehr gering sein müssen, so daß hier größere Abweichungen von idealer Pfropfenströmung auftreten können.

In Abb.68b ist schließlich der Verlauf von η über $K_F \cdot a$ für eine gegenüber Abb.68a um 80% verkürzte Kolonne dargestellt. Neben der insgesamt größeren, oben schon diskutierten Abweichung erkennt man auch eine Verschiebung der Minima zu

*) Eine Verkürzung der Verweilzeit durch höhere Geschwindigkeiten ist wegen der Erhöhung des Druckverlustes nur begrenzt möglich.

größeren $K_F \cdot a$ -Werten. Durch diese Verschiebung verläßt man jedoch den Bereich, in dem z.B. in Blasensäulen gemessene Stoffübergangskoeffizienten liegen ($K_F \cdot a = 0,004 - 0,02 \text{ 1/s}^{17}$).

Damit ist erwiesen, daß man bei der Auslegung von Stoffaustauschapparaten, die in dem hier beschriebenen Aufstromverfahren betrieben werden, mit den für ideale Strömungsrohre abgeleiteten Formeln arbeiten kann, ohne durch die realen Bedingungen eine merkliche Verringerung des Austauschgrades in Kauf nehmen zu müssen. In den Sonderfällen, bei denen z.B. die Endkonzentration des Gases eine obere, auf wenige Bruchteile von Prozenten festgesetzte Grenze nicht überschreiten darf, besteht in der beschriebenen Methode eine Möglichkeit, unter Verwendung der korrelierten Dispersionskoeffizienten die Abweichung abzuschätzen und die Absorptionskolonne entsprechend größer zu dimensionieren.

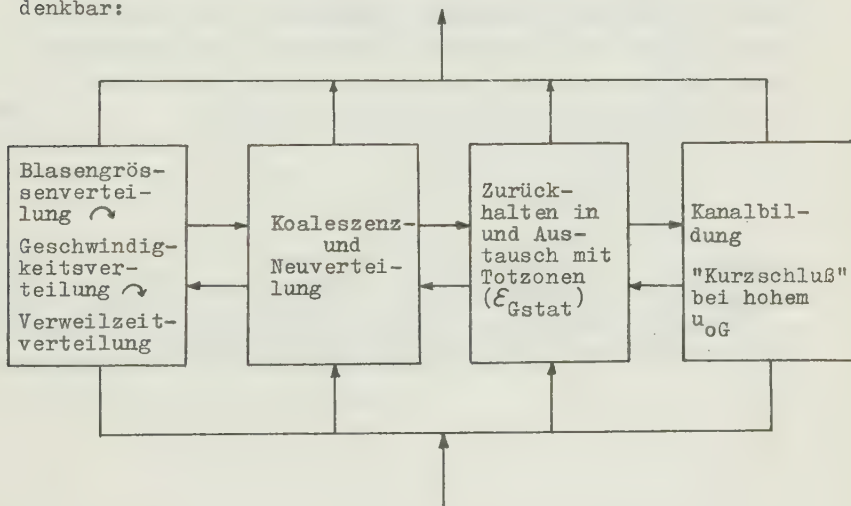
V. Die Axialdispersion der Gasphase

1. Theoretische Grundlagen

1.1 Die Anwendung des Dispersionsmodells auf die verteilte Gasphase

Besteht die Gasphase aus mehreren Komponenten, deren Konzentration sich durch eine Reaktion oder durch einen Stoffaustauschprozeß während des Durchströmens der Schüttung verändern, dann kann die Vermischung der Gasphase eine Verminderung des Umsatz- bzw. Austauschgrades bewirken (s.Kap. IV.4.). Zur Dimensionierung von Aufstromkolonnen müssen daher auch für die Gasphase eine oder mehrere Kennzahlen gefunden werden, mit denen die Abnahme der Konzentrationsdifferenzen infolge der Vermischung angegeben werden kann.

Die dazu erforderliche mathematische Beschreibung des von Ort und Zeit abhängigen Konzentrationsverlaufes ist in dem vorliegenden komplizierten System nur mit Hilfe von Modellvorstellungen möglich. Unter Berücksichtigung der in Kap. II.5. schon angedeuteten Mechanismen, die eine Verbreiterung des Verweilzeitspektrums verursachen, wäre folgende Vorstellung denkbar:



Die vier in dem Schema angegebenen Effekte, die im wesentlichen für die Vermischung der Gasphase verantwortlich sind, lassen sich nicht durch schon bekannte und berechenbare Modellfälle (Rührkessel, Kaskade etc.) ersetzen, da sie ihrerseits bereits eine willkürliche Kombination solcher Modellfälle darstellen. So kann man sich z.B. den Mechanismus der vor allem durch die Füllkörper erzwungenen Koaleszenz und Neuverteilung der Blasen als ein System von ideal durchmischten Rührkesseln mit mehreren Zu- und Abläufen vorstellen, wobei sich jeweils der Zulauf eines Kessels aus dem Ablauf mehrerer anderer Kessel zusammensetzt, während man die aus der Blasengrößenverteilung resultierende Verweilzeitverteilung sowie den Effekt der Kanalbildung durch ein System parallel geschalteter Strömungsröhre mit unterschiedlichen Verweilzeiten beschreiben könnte.

Da aber die Verweilzeitverteilung insgesamt durch eine zufällige Kombination solcher parallel bzw. in wechselnder Reihenfolge nacheinander ablaufender Einzeleffekte verursacht wird, führt auch die modellmäßige Beschreibung dieser Einzeleffekte zu keinem Ergebnis.

Man kann jedoch die Bewegung der Einzelblasen als einen stochastischen Prozeß betrachten, der durch das gleichzeitige Einwirken von stationären Kräften (Auftrieb und Reibung) als auch von zufälligen Kräften (Abbremsung, Umlenkung und Beschleunigung) bestimmt wird und dem der Mechanismus der Koaleszenz und Neuverteilung überlagert ist. Bei der großen Zahl der pro Kolonnenvolumen aufsteigenden Blasen

$$\frac{\bar{n}}{V} = \frac{6 \xi_g}{\bar{d}_B^3} \quad (\approx 3 \cdot 10^3 / l)$$

d.h. der pro Zeitintervall und Volumenelement ablaufenden Einzelvorgänge erscheint es dann berechtigt, für die Vermischung der Gasphase auch das Dispersionsmodell zugrunde zu legen.

Daß dieses Modell nicht nur zur Beschreibung der Vermischung der kontinuierlichen sondern auch der verteilten Phase geeignet ist, zeigen erfolgreiche, auf dem Diffusionsmodell basierende Beschreibungen ähnlicher Systeme, in denen von zwei fluiden Phasen die eine in verteilter Form durchgesetzt wird. So wird z.B. die Vermischung der Gasphase in Blensäulen^{17,53)} und in Gegenstromkolonnen^{12,24)} mit Hilfe des Dispersionsmodells ermittelt. Auch für Systeme, in denen Tropfen^{63,64)} oder feste Partikel⁶⁵⁾ in einer zusammenhängenden flüssigen Phase verteilt sind, wurde ein aus dem Dispersionsmodell resultierender Mischkoeffizient für die disperse Phase definiert.

Im folgenden soll eine Meßmethode zur Bestimmung der Axialdispersion der Gasphase in Aufstromkolonnen entwickelt werden, mit der in einer Reihe von Testversuchen die Größenordnung des aus dem Dispersionsmodell folgenden Mischkoeffizienten D_{AG} zu bestimmen ist. Dabei wird in Analogie zur Untersuchung der flüssigen Phase die nach einer Impulsmarkierung der Gasphase stromabwärts registrierte Verweilzeitverteilungskurve mit Hilfe der Momentenmethode ausgewertet.

1.2 Der Einfluß der Löslichkeit des Spurgases auf die Varianz der Verweilzeitverteilungsfunktion

Während es bei der Wahl des Indikators zur Markierung der flüssigen Phase vor allem darauf ankommt, eine Substanz von gleicher Dichte zu finden, die nicht von den Füllkörpern adsorbiert wird, muß bei der Markierung der Gasphase darauf geachtet werden, einen in der Flüssigkeit möglichst wenig löslichen Indikator zu wählen. Aus der Absorption des Spurgases in der flüssigen Phase und der anschließenden Desorption durch den Hauptgasstrom resultiert sonst eine zusätzliche Verweilzeitverteilung (Gaschromatographie-Effekt), die einen zu großen Mischkoeffizienten vortäuscht.

Folgende Spurgase, die sich in einer bestimmten physikalischen Eigenschaft vom Hauptgasstrom unterscheiden, sind bisher bei der Untersuchung ähnlicher Systeme verwendet worden:

Helium (analysiert mit einem Wärmeleitfähigkeitsdetektor) in Blasensäulen⁵³⁾, Butan (Flammen-Ionisationsdetektor) in Blasensäulen¹⁷⁾, Helium (Massenspektrometer) in begasten Rührkesseln¹⁷⁾, Wasserstoff (W.L.D.) in Gegenstromkolonnen²⁴⁾ und Quecksilberdampf (Spektralphotometer) in Rieselkolonnen⁵⁸⁾.

Um den Einfluß der Löslichkeit des Indikators abschätzen zu können, muß zunächst die Varianz σ_L^2 der Verweilzeitverteilung infolge der Löslichkeit und unter Annahme idealer Pfropfenströmung berechnet werden. Aufgrund der Additivität der normierten Varianzen $\sigma^2 = \sigma_t^2 / \bar{t}^2$ bei statistisch unabhängigen, gleichzeitig ablaufenden Mechanismen⁶¹⁾, kann dann die Varianz der nach einer Impulsmarkierung registrierten Verweilzeitverteilung aus σ_L^2 und σ_D^2 zusammengesetzt werden, wobei σ_D^2 aus dem Dispersionsmodell ohne Berücksichtigung der Löslichkeit folgt:

$$\sigma^2 = \sigma_L^2 + \sigma_D^2$$

Zur Berechnung der Varianz σ_L^2 muß die Materialbilanz für den gasförmigen Spurstoff aufgestellt werden, der in Form einer Stoßmarkierung am Boden der Kolonne eingegeben wird und von dem Gasstrom durch die nicht strömende Flüssigkeit transportiert wird. Ein Volumenelement ΔV der Kolonne sei entsprechend der Abb.70 in drei Anteile $\Delta V_K = (1-\varepsilon)\Delta V$, $\Delta V_F = \varepsilon_F \cdot \Delta V$ und $\Delta V_G = \varepsilon_G \cdot \Delta V$ aufgeteilt, die Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit sei ΔA .

Dann gilt für die Gasphase:

$$dV_G \cdot \frac{\partial c_G}{\partial t} = -u_G \cdot F_G \frac{\partial c_G}{\partial x} dx + K_G \cdot dA \cdot (H_T \cdot c_F - c_G)$$

Mit $\Delta V_G = F_G \cdot \Delta x$ wird:

$$\frac{\partial c_G}{\partial t} = -u_G \cdot \frac{\partial c_G}{\partial x} + K_G \cdot \frac{dA}{dV_G} (H_T \cdot c_F - c_G) \quad (46)$$

Für die Flüssigphase gilt:

$$dV_F \cdot \frac{\partial c_F}{\partial t} = K_G \cdot dA (c_G - H_T \cdot c_F)$$

$$\frac{\partial c_F}{\partial t} = K_G \cdot \frac{dA}{dV_F} (c_G - H_T \cdot c_F) \quad (47)$$

Führt man die spezifische Austauschfläche ein, die auf das von beiden Phasen eingenommenen Einheitsvolumen bezogen ist:

$$a = \frac{dA}{\varepsilon \cdot dV}$$

dann wird:

$$\frac{dA}{dV_G} = \frac{dA}{\varepsilon_G dV} = a \cdot \frac{\varepsilon}{\varepsilon_G}$$

und

$$\frac{dA}{dV_F} = \frac{dA}{\varepsilon_F dV} = a \cdot \frac{\varepsilon}{\varepsilon_F}$$

Eingesetzt in Gl.(46) und (47) wird damit:

$$\frac{\partial c_G}{\partial t} = -u_G \cdot \frac{\partial c_G}{\partial x} + K_G \cdot \frac{a \cdot \varepsilon}{\varepsilon_G} (H_T \cdot c_F - c_G)$$

$$\frac{\partial c_F}{\partial t} = K_G \cdot \frac{a \cdot \varepsilon}{\varepsilon_F} (c_G - H_T \cdot c_F)$$

Durch Laplace-Transformation wird:

$$s \cdot \check{c}_G - c_{G(+0, x)} = -u_G \cdot \frac{d\check{c}_G}{dx} + K_G \cdot \frac{a \cdot \varepsilon}{\varepsilon_G} (H_T \cdot \check{c}_F - \check{c}_G) \quad (48)$$

$$s \cdot \check{c}_F - c_{F(+0, x)} = K_G \cdot \frac{a \cdot \varepsilon}{\varepsilon_F} (\check{c}_G - H_T \cdot \check{c}_F) \quad (49)$$

Eliminiert man $\check{c}_F$ aus Gleichung (49) und setzt es in Gleichung (48) ein, dann wird mit

$$c_{G(+0, x)} = c_{F(+0, x)} = 0$$

$$u_G \cdot \frac{d\check{c}_G}{dx} + \check{c}_G \left(s - \frac{H_T (K_G \cdot a \cdot \varepsilon)^2}{H_T \cdot K_G \cdot a \cdot \varepsilon \cdot \varepsilon_G + s \cdot \varepsilon_F \varepsilon_G} + K_G \cdot \frac{a \cdot \varepsilon}{\varepsilon_G} \right) = 0 \quad (50)$$

Zur Zeit $t=0$ soll an der Stelle $x=0$ die gesamte Spurgasmenge in unendlich kurzer Zeit eingegeben werden. Daraus folgt als Randbedingung:

$$c_{G(0,0)} = \left\{ \int_0^\infty c_G dt \right\} \cdot \delta(t)$$

Darin bedeutet $\delta(t)$ die Dirac'sche Deltafunktion, für die

$$\int_0^\infty \delta(t) dt = 1$$

und

$$\mathcal{L}\{\delta(t)\} = 1$$

gilt.

Durch Laplace-Transformation der Randbedingung wird:

$$\check{c}_G = \int_0^\infty c_G dt \quad (t=0, x=0)$$

Mit dieser Randbedingung ergibt sich als Lösung der Differentialgleichung (50):

$$\check{c}_G = \left(\int_0^\infty c_G dt \right) \exp \left\{ - \frac{x}{u_G} \left(s \frac{H_T (K_G \cdot a)^2}{H_T K_G a \varepsilon_G + s \varepsilon_F \varepsilon_G} + K_G \frac{a \cdot \varepsilon}{\varepsilon_G} \right) \right\} \quad (51)$$

Die Rücktransformation der Lösung (51) kann unterbleiben, da man durch Differentiation der Lösung nach s für $s=0$ unmittelbar die zur Berechnung von ζ_L^2 benötigten Momente erhält:

$$\lim_{s \rightarrow 0} \frac{\partial^n \check{f}(s, x)}{\partial s^n} = (-1)^n \cdot M_n \quad (n=1, 2, 3 \dots m) \quad (52)$$

wobei:

$$M_n = \int_0^\infty t^n \cdot f(t, x) dt$$

Setzt man hierin für $f(t, x)$ die gesuchte Gaskonzentration am Ende der Kolonne $c_G(t, H)$ ein, so folgt aus:

$$\zeta_L^2 = \frac{\zeta_{Lt}^2}{\bar{t}_L^2} = \frac{\left(\int_0^\infty (t - \bar{t})^2 \cdot c_G(t, H) dt \right) / \left(\int_0^\infty c_G(t, H) dt \right)}{\left\{ \left(\int_0^\infty t \cdot c_G(t, H) dt \right) / \left(\int_0^\infty c_G(t, H) dt \right) \right\}^2} \quad \text{(s. Gl. 36a, b)}$$

folgender Ausdruck für die gesuchte Varianz:

$$\zeta_L^2 = \frac{M_0 \cdot M_2}{M_1^2} - 1 \quad (53)$$

Die Momente M_1 und M_2 erhält man entsprechend Gl.(52):

$$-M_1 = \lim_{s \rightarrow 0} \frac{\partial \check{c}_G(s, H)}{\partial s} = - \left(\int_0^\infty c_G dt \right) \frac{H}{u_G} \left(1 + \frac{\varepsilon_F}{\varepsilon_G H_T} \right)$$

$$M_2 = \lim_{s \rightarrow 0} \frac{\partial^2 \check{c}_G(s, H)}{\partial s^2} = \left(\int_0^\infty c_G dt \right) \cdot \frac{H}{u_G} \left[\frac{2 \varepsilon_F^2}{H_T^2 K_G a \varepsilon_G} + \frac{H}{u_G} \left(1 + \frac{\varepsilon_F}{H_T \varepsilon_G} \right)^2 \right]$$

Das nullte Moment wird:

$$M_0 = \int_0^{\infty} c_G dt$$

Setzt man für H/u_G die mittlere Verweilzeit τ_G ein, so wird die mittlere Aufenthaltszeit der Spurgasmoleküle:

$$\bar{t} = \frac{M_1}{M_0} = \tau_G \left(1 + \frac{\epsilon_F}{\epsilon_G \cdot H_T} \right)$$

das heißt:

$$\frac{\bar{t}}{\tau_G} = 1 + \frac{\epsilon_F}{\epsilon_G \cdot H_T}$$

Das bedeutet, daß die mittlere Aufenthaltszeit $\bar{t}$ der Einzelmoleküle nur im Falle eines sehr großen Henry-Koeffizienten^{*)}, d.h. bei Verwendung eines unlöslichen Gases, mit der mittleren Verweilzeit τ_G übereinstimmt.

Setzt man M_0 , M_1 und M_2 in Gl.(53) ein, dann wird:

$$\zeta_L^2 = \frac{2\epsilon_G}{\tau_G \cdot K_G \cdot a \cdot \epsilon} \left(\frac{1}{1 + \frac{\epsilon_G \cdot H_T}{\epsilon_F}} \right)^2 \quad (54)$$

Die Verbreiterung des Verweilzeitspektrums ist also gering, wenn:

- a) das Spurgas schlecht in der Flüssigkeit löslich ist (H_T groß),
- b) der Stoffübergang so schnell verläuft, daß der Konzentrationspeak in der Flüssigphase mit fast der gleichen Geschwindigkeit wie in der Gasphase durch die Kolonne wandert ($K_G \cdot a$ groß),

*) Der Henry-Koeffizient ist hier dimensionslos als Mole Indikator im Gasstrom zu Mole gelösten Spurgases in der Flüssigkeit einzusetzen.

- c) die mittlere Verweilzeit der Gasphase so groß ist, daß die für den Stoffübergang erforderliche Zeit demgegenüber vernachlässigt werden kann (τ_G groß),
- d) im Verhältnis zum gesamten freien Zwischenraum der Anteil der Gasphase gering ist (ϵ_G/ϵ klein),
- e) im Verhältnis zur Gasphase nur sehr wenig Flüssigkeitsvolumen für die Absorption zur Verfügung steht (ϵ_G/ϵ_F groß).

Um angeben zu können, wie groß der durch die Löslichkeit des Spurgases hervorgerufene Anteil an der experimentell bestimmten Varianz der Verweilzeitverteilung wird, soll das Verhältnis

$$\lambda = \frac{\sigma_L^2}{\sigma_L^2 + \sigma_D^2}$$

gebildet werden.

Unter der Annahme einer unendlich lang gedachten Kolonne gilt für σ_D^2 nach Levenspiel¹⁸⁾:

$$\sigma_D^2 = 2 \cdot \frac{D_{AG}}{u_G \cdot H} \quad (H \hat{=} \text{Länge der Meßstrecke})$$

Damit wird

$$\lambda = \left\{ 1 + \frac{D_{AG} \cdot K_G \cdot a \cdot \epsilon}{\epsilon_G \cdot u_G^2} \left(1 + \frac{\epsilon_G}{\epsilon_F} H_T \right)^2 \right\}^{-1} \quad (55)$$

Für eine graphische Darstellung von λ über H_T muß der Variationsbereich für:

$$N = \frac{D_{AG} \cdot K_G \cdot a \cdot \epsilon}{\epsilon_G \cdot u_G^2}$$

angegeben werden. Mit den für die hier untersuchten Systeme zutreffenden Werten wird:

	Min. (u_G)	Max. (u_G)		
u_G	15	36	cm/s	(s. Abb.25)
ε_G	0,03	0,19	-	(eigene Messungen)
ε_F	0,64	0,48	-	(= $\varepsilon - \varepsilon_G$ für $\varepsilon = 0,67$)
D_{AG}	25	1000	cm ² /s	(eigene Messungen)
a	0,2	2,0	cm ² /cm ³	(eigene Messungen)
K_G	0,02	0,045	cm /s	(in Analogie zu Blasen- säulen ¹⁷⁾)
N	0,01	0,245	-	
$\varepsilon_G/\varepsilon_F$	0,047	0,396	-	

Für häufig verwendete Spurgase beträgt der Henry-Koeffizient für das System Gas-Wasser bei 20 °C:

	$H_T^* \text{ [mm Hg]}$	$H_T = H_T^* \cdot \frac{V_M}{RT} [-]$
Quecksilber- dampf	$0,94 \cdot 10^9$	925
Helium	$1,09 \cdot 10^8$	107
Wasserstoff	$5,2 \cdot 10^7$	51,2
Argon	$2,58 \cdot 10^7$	25,4
Äthylen	$0,753 \cdot 10^7$	7,5
Butan	$0,62 \cdot 10^7$	6,1

Der in Abb.71 dargestellte Verlauf von

$$\lambda = \frac{1}{1 + N(1 + \frac{\varepsilon_G}{\varepsilon_F} H_T)} 2^{-}$$

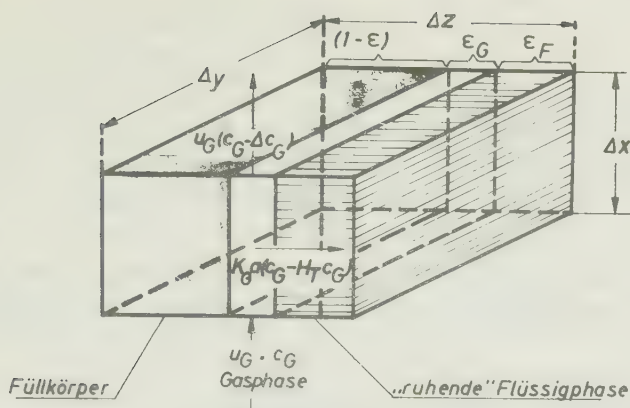


Abb.70: Modellvorstellung zur Aufstellung der Materialbilanz für das Spurgas

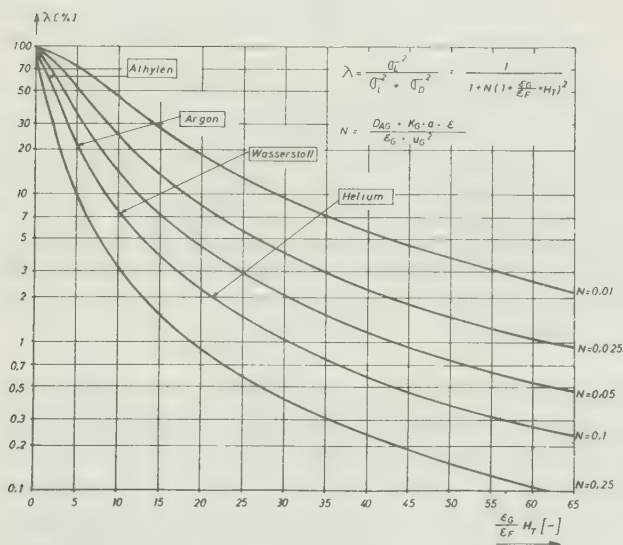


Abb.71: Der prozentuale Anteil der Löslichkeit an der Varianz der aus Dispersion und Löslichkeit resultierenden Verteilzeitverteilungskurve

über $(\epsilon_G/\epsilon_F) \cdot H_T$ zeigt, daß der allein durch die Ab- und Desorption des Spurgases in der flüssigen Phase hervorgerufene prozentuale Anteil der Gesamtvarianz der Verweilzeitverteilungskurven beträchtliche Werte annehmen kann, wenn man bei kleinen Werten für N nicht sehr wenig lösliche Gase verwendet. Die in Abb.71 eingezeichneten Werte für verschiedene Spurgase (Helium bis Äthylen) gelten für einen mittleren Wert $\epsilon_G/\epsilon_F = 0,2$ und $N = 0,1$.

Aufgrund dieser Abschätzung wurde die Gasphase schließlich nach einigen Testversuchen mit anderen Spurgasen mit Helium markiert.

2. Versuchsdurchführung und Auswertung

2.1 Anwendung des Differenzenverfahrens

In Analogie zur Messung der Axialdispersion in der Flüssigkeit wurde versucht, das dort benutzte Differenzenverfahren auf die Untersuchung der Gasphase zu übertragen. Dazu wurde das Spurgas über ein Magnetventil (0,1 sec Öffnungszeit) am Boden der Kolonne (Raschigringschüttung, $d_t = 30,5$ cm) direkt in den eintretenden Hauptgasstrom eingespritzt und stromabwärts in zwei Meßebenen registriert ($\Delta x = 150$ cm). In Abb.72 ist das zur Gasentnahme entwickelte Verfahren, das nach dem Mammutpumpenprinzip arbeitet, dargestellt. Nach der Abscheidung mitgerissener Wassertropfen wird das abgesaugte Gas mit einem Wärmeleitfähigkeitsdetektor analysiert und in Rotametern gemessen. Das Ausgangssignal der beiden Meßbrücken wird mit einem Zweikanalschreiber registriert.

Die Auswertung der nach diesem Verfahren durchgeführten Testversuche scheiterte jedoch daran, daß die Zeit, die der Hauptgasstrom zum Zurücklegen der Meßstrecke Δx benötigt, sehr gering ist (ca. 4-7 sec) und in der gleichen Größenordnung liegt wie die Zeit von der Gasentnahme bis zur Registrierung. Dadurch führten geringe Differenzen in den sehr kleinen Entnahmeströmen zu zeitlichen Verschiebungen der registrierten Verweilzeitverteilungskurven, so daß keine reproduzierbaren Ergebnisse erzielt werden konnten.

2.2 Vereinfachtes Meßverfahren

Da es möglich ist, das Spurgas in sehr kurzer Zeit entsprechend einer Impulsfunktion einzuspritzen^{*)}, genügt es auch, die Antwortfunktion an nur einer Stelle zu messen. Dazu wurden vier über den Querschnitt verteilte Trichter direkt auf die Schüttung am oberen Kolonnenende aufgesetzt, durch die ein repräsentativer Gasstrom mit hoher Geschwindigkeit abgesaugt wurde. Nach Abscheidung mitgerissener Wassertropfen erfolgte die Analyse wieder mit einem Wärmeleitfähigkeitsdetektor. Da die Meßeinrichtung (Trichter-Kapillare-Abscheider-Meßzelle) einer zusätzlichen Strecke mit Totzeit und Vermischung gleichkommt, muß deren Verhalten getrennt gemessen werden. Dazu wurde der abgesaugte Gasstrom direkt am Trichtereingang impulsförmig markiert. Aus der Verweilzeitverteilungsfunktion der Meßstrecke wurde schließlich $\bar{t}_{\text{Meß}}$ und $\sigma_{t, \text{Meß}}^2$ ermittelt und bei der Auswertung (s.Kap. V.2.3) berücksichtigt.

2.3 Die Auswertung der Meßergebnisse

Da die digitale Datenerfassungsanlage durch die Versuche zur Bestimmung der Flüssigkeitsvermischung meistens blockiert war, wurden hier die registrierten Verweilzeitverteilungskurven (s.Abb.21) auf einem automatischen Kurvenauswerter^{**)} mit je nach Steilheit des Anstiegs unterschiedlichem Vorschub von 0,25 bis 1 mm optisch abgetastet. Die ausgedruckten Ordinatenwerte wurden mit einem Fernschreiber in Lochstreifen gestanzt und mit Hilfe eines Algolprogramms (s.Anhang A5) auf einem Digitalrechner ausgewertet.

Zur Bestimmung der die Dispersion charakterisierenden Bodenstein'schen Kennzahl kann im vorliegenden Fall die von Levenspiel¹⁸⁾ für "closed-open systems" abgeleitete Beziehung

*) Die Einspritzdauer lag im Mittel unter 1% der mittleren Verweilzeit τ_G .

**) Typ: Varian MAT, KA 101

$$\sigma_K^2 = \frac{\sigma_{tK}^2}{\bar{t}_K^2} = 2 \frac{D_{AG}}{u_G \cdot H} + 3 \left(\frac{D_{AG}}{u_G \cdot H} \right)^2 \quad (56)$$

zugrunde gelegt werden. Dabei wird vor und nach der Markierungsstelle gleiches Strömungsverhalten vorausgesetzt. In Gleichung (56) bedeuten $\bar{t}_K$ und σ_{tK}^2 die mit Gleichung (38) und (39) beschriebenen normierten Momente, wobei die Integration wieder durch Summation mit äquidistanter Schrittweite approximiert wird. Das Integrationsende ist bei der Auswertung der Kurven durch das Auflösungsvermögen des optischen Abtastsystems festgelegt. Wenn Kurve und Abszisse nicht mehr als zwei getrennte Linien identifiziert werden können, wird als Ordinatenwert 0 ausgedruckt. Der letzte hier noch erfaßte Wert lag immer unter 0,5% des Maximalausschlagés.

Unter Berücksichtigung der durch die Meßstrecke hervorgerufenen zusätzlichen Vermischung und zeitlichen Verzögerung erhält man die normierte Varianz σ_K^2 der Kolonne allein aus:

$$\sigma_K^2 = \frac{\sigma_{t_{ges}}^2 - \sigma_{t_{Meß}}^2}{(\bar{t}_{ges} - \bar{t}_{Meß})^2}$$

Die Berechnung des Dispersionskoeffizienten D_{AG} erfolgt schließlich nach:

$$D_{AG} = \frac{u_G \cdot H}{2} \left(\sqrt{1 + 3 \sigma_K^2} - 1 \right)$$

3. Experimentelle Ergebnisse und Vergleich mit ähnlichen Systemen

Die Verweilzeitverteilung der Gasphase wurde in zwei mit Raschigringen ($d_p = 1$ cm) gefüllten Kolonnen (A und B) bei ruhender Flüssigphase gemessen. Für die Untersuchung der Kolonne mit 30,5 cm Durchmesser wurde Wasserstoff als Spurgas verwendet. Die Mittelwerte aus je 5 Messungen sind in Abb.73 über dem Gasdurchsatz (bis $u_{OG} = 2,2$ cm/s) aufgetragen. Man beobachtet eine zunächst sehr starke Zunahme des Dispersionskoeffizienten innerhalb eines Bereiches, in dem sich aus anfänglich wenigen, annähernd gleichgroßen Blasen mit wachsendem Durchsatz ein Blasenschwarm mit annähernd konstanter Blasengrößenvverteilung (d.h. Geschwindigkeits- bzw. Verweilzeitverteilung) bildet. Einen ähnlichen, jedoch zu etwas höheren Gasdurchsätzen hin verschobenen Verlauf zeigen die von Frederking⁶⁾ in einer Kolonne mit 14 cm Durchmesser gemessenen Werte. Hierbei wurde Helium als Spurgas verwendet, nachdem eine Reihe von Testversuchen unter Verwendung von Argon und Äthylen gezeigt hatte, daß entsprechend der Ableitung in Kap. V.1.3 eine deutliche Verbreiterung des Verweilzeitspektrums mit zunehmender Löslichkeit des Spurgases zu beobachten war.

Mit Hilfe des in Kap. V.1.2 angegebenen Verfahrens konnten jedoch die mit Äthylen und Argon als Spurgas durchgeführten Versuche umgerechnet werden. Durch Multiplikation der mit Äthylen bzw. Argon gefundenen normierten Varianzen mit den aus Abb.71 ablesbaren entsprechenden Werten $(1 - \lambda)$ folgt

$$\sigma_D^2 = \sigma_{Ar}^2 (1 - \lambda_{Ar})$$

bzw.

$$\sigma_D^2 = \sigma_{Ath}^2 (1 - \lambda_{Ath})$$

Die aus den so korrigierten σ_D^2 -Werten berechneten Dispersionskoeffizienten stimmten gut mit denen überein, die bei Verwendung von Helium als Spurgas ermittelt wurden.

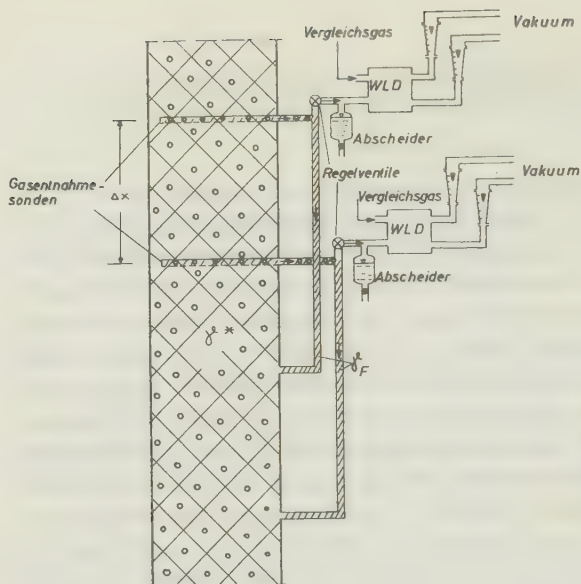


Abb.72:

Meßeinrichtung zur Ermittlung der Axialdispersion der Gasphase

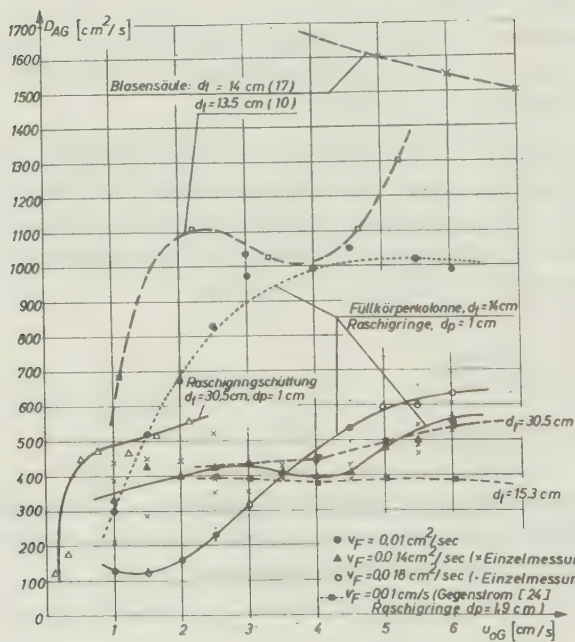


Abb.73:

Axialer Dispersionskoeffizient der Gasphase

Schließlich wurden Versuche bei veränderter Zähigkeit der flüssigen Phase durchgeführt. Die gemessenen Dispersionskoeffizienten für $\nu_F = 0,014$ bzw. $0,018 \text{ cm}^2/\text{s}$ sind kleiner als die unter sonst gleichen Bedingungen gefundenen Werte für $\nu_F = 0,01 \text{ cm}^2/\text{s}$. Dies liegt offensichtlich daran, daß in zäheren Flüssigkeiten - wegen der vorne schon beschriebenen geringeren Aufstiegsgeschwindigkeit - die Koaleszenz- und Neuzerteilungsvorgänge seltener sind und das Blasengrößenspektrum weniger breit ist. Dieser Unterschied zwischen Wasser und zäheren Flüssigkeiten zeigte sich auch bei Auftragung der mittleren Verweilzeiten der Gasphase über dem Gasdurchsatz (s. Abb. 22); die Aufenthaltszeiten der Gasphase liegen vor allem im Bereich kleiner Durchsätze bei zäheren Flüssigkeiten deutlich über den in Wasser gemessenen Werten. Die Überschneidung der Kurven, die die Mittelwerte der Messungen bei $\nu_F = 0,014$ und $0,018 \text{ cm}^2/\text{s}$ verbinden, kann vorerst nicht erklärt werden. Sie ist kaum allein auf Meßfehler sondern wahrscheinlich auf eine durch das verwendete Modell nicht erfaßbare Überlagerung verschiedener Mechanismen in verschiedenen Durchsatzbereichen zurückzuführen.

Neben den eigenen Messungen sind in Abb. 73 die von Diboun et al.¹⁰⁾ und Reith¹⁷⁾ in Blasensäulen gemessenen Dispersionskoeffizienten eingetragen. Sie liegen deutlich über denen in Schütttschichten, da in Blasensäulen ähnlich wie bei der flüssigen Phase größere Zirkulationsströmungen möglich sind und da sich aufgrund fehlender Einbauten eine breitere Blasengrößenverteilung einstellen kann. Von Carleton et al.²⁴⁾ sind Messungen der axialen Vermischung der Gasphase in Gegenstromkolonnen veröffentlicht worden. Rechnet man die hier für eine Füllkörperschüttung aus Raschigringen ($d_p = 1,9 \text{ cm}$) in Kolonnen von $d_{\pm} = 30,5$ bzw. $15,3 \text{ cm}$ angegebenen Peclet-Zahlen $Pe_G = \frac{u_G \cdot H}{D_{AG}}$ in D_{AG} -Werte um, indem man für u_G die hier in Raschigringschüttungen ($d_p = 1 \text{ cm}$) gemessenen Werte einsetzt, dann ergeben sich die in Abb. 73 eingezeichneten Kurven, die in der gleichen Größenordnung wie die hier bei höheren Zähigkeiten gemessenen liegen.

Hier sollte erreicht werden, eine weitgehend fehlerfreie Meßtechnik zu entwickeln und in ersten Versuchen die Größenordnung des Dispersionskoeffizienten der Gasphase zu ermitteln. Um jedoch einen experimentell gesicherten Zusammenhang zwischen D_{AG} und den verschiedenen Einflußgrößen angeben zu können, müßten noch weitere Versuche, vor allem mit anderen Füllkörpern und strömender Flüssigphase durchgeführt werden.

VI. Zusammenfassung

=====

In der vorliegenden Arbeit wird das hydrodynamische Verhalten von Füllkörperkolonnen untersucht, die von einer zusammenhängenden flüssigen und einer verteilten Gasphase im Gleichstrom von unten nach oben durchströmt werden. Dieser als Aufstromkolonne bezeichnete Apparatetyp kann sowohl als chemischer Reaktor als auch als Austauschapparat eingesetzt werden, wobei die Schüttung als Katalysatorträger bzw. zur Schaffung einer größeren Austauschfläche dient.

Zur Berechnung des Umsatz- bzw. Austauschgrades in solchen Kolonnen müssen neben reaktionskinetischen bzw. den für Stoffaustauschvorgänge charakteristischen Daten die Volumenanteile und Vermischungsvorgänge beider Phasen bekannt sein. Für die Eingliederung der Aufstromkolonne in einen aus mehreren Einheiten bestehenden Gesamtprozeß ist schließlich die Kenntnis des Druckverlustes erforderlich.

Der nach verschiedenen Methoden gemessene Anteil des Gasvolumens am Gesamtvolumen der Kolonne setzt sich aus einem statischen und einem dynamischen Anteil zusammen. Der dynamische Anteil hängt im wesentlichen vom Gasdurchsatz und den physikalischen Eigenschaften der flüssigen Phase ab, während der statische Anteil vorwiegend durch die geometrischen Abmessungen der Schüttung bestimmt wird. Der Gesamtgasvolumenanteil läßt sich in dem untersuchten Bereich mit einer mittleren Abweichung von 3.5% durch folgende halbempirische Korrelationsgleichung beschreiben:

$$\xi_G = 0,01 \left\{ 8 \epsilon / d_p + 1,2 \cdot 10^{-2} d_t + 11 \left(\frac{V_F}{V_W} - 1 \right)^{5/4} - 2 + 4,45 u_{oG}^{2/3} \right\} \left(\frac{\sigma_W}{\sigma_F} \right)^{1,8}$$

Die Änderung des Gasvolumenanteils mit der Höhe der Kolonne äußert sich nicht durch eine Vergrößerung der Gasblasen, sondern durch eine Zunahme der Anzahl von Blasen pro Volumeneinheit. Die aus Kontinuitätsgleichung und Impulsbilanz berechnete Höhenabhängigkeit des Gasvolumenanteils stimmt gut mit derjenigen überein, die experimentell aus Durchstrahlungsmessungen ermittelt wird.

Die effektive Strömungsgeschwindigkeit der Gasphase kann experimentell unter Berücksichtigung eines Druckkorrekturfaktors ermittelt werden. Sie liegt in den untersuchten Systemen nur wenig unterhalb der Geschwindigkeit von frei aufsteigenden, etwa gleich großen Einzelblasen und kann durch folgende empirische Beziehung mit einer mittleren Abweichung von 2,5% beschrieben werden:

$$u_G = 24,5 - 8 \cdot \sqrt{V_F/V_W} + (2,2+1,32 d_p) u_{oG}$$

Die Druckänderung über die Höhe der Aufstromkolonne folgt aus der hydrostatischen Druckänderung sowie den drei Reibungsdruckverlusten Gas-Flüssigkeit, Gas-Füllkörper und Flüssigkeit-Füllkörper. Während sich der bei einphasiger Flüssigkeitsströmung gemessene Druckverlust mit dem von Ergun aufgestellten Widerstandsgesetz beschreiben läßt, muß für die Abbremsung und Umlenkung der Gasblasen an den festen Einbauten ein weiterer, experimentell zu bestimmender Widerstandskoeffizient eingeführt werden.

Bei ruhender Flüssigkeit kann der dem jeweiligen Gasdurchsatz entsprechende Druckverlauf als Funktion der Kolonnenhöhe mit Hilfe der Impulsbilanz berechnet werden. Mit der daraus unter gewissen Vereinfachungen abgeleiteten Beziehung für die Druckänderung

$$\left. \frac{\Delta p}{\Delta H} \right|_{u_{Fo}} = \int_0 = \gamma_F - \frac{u_{oG}}{u_G} \left(\frac{0,85 \cdot \gamma_F}{\epsilon - \epsilon_{Gstat}} - \alpha \cdot \gamma_G(H) \right)$$

lassen sich die in den verschiedenen Schüttungen gemessenen Werte mit einer maximalen Abweichung von 4% beschreiben.

Bei strömender Gas- und Flüssigphase können die durch die Überlagerung der Einzeleffekte hervorgerufenen Wechselwirkungen in dem untersuchten Bereich durch eine Korrekturfunktion

$$\varphi = 1 - u_{oF}/4$$

erfaßt werden. Damit kann man die auf die jeweilige Kolonnenhöhe bezogene Gesamtdruckänderung mit der Beziehung

$$\delta_{\text{ges}} = \delta_F + \delta_F - \gamma(\delta_F - \delta_0)$$

vorausberechnen. Angewendet auf die untersuchten Systeme ergibt sich eine mittlere Abweichung von weniger als 5% zwischen den gemessenen und den so berechneten Werten.

Die den Umsatz bzw. Austauschgrad reduzierende Axialdispersion der flüssigen Phase kann in Analogie zu den Methoden ermittelt werden, die von der Untersuchung einphasig durchströmter Systeme her bekannt sind.

Dazu wird das Dispersionsmodell zugrunde gelegt und mit Hilfe der Momentenmethode ein axialer Dispersionskoeffizient aus der Verweilzeitverteilungsfunktion bestimmt. Zur Registrierung der zeitlichen Konzentrationsänderungen (Verweilzeitverteilungskurven), die nach einer Impulsmarkierung der flüssigen Phase in drei stromabwärts liegenden Ebenen gemessen werden, wird eine digitale Datenerfassungsanlage verwendet. Die Auswertung der auf Lochstreifen gespeicherten Daten erfolgt auf einem Digitalrechner.

Die in Schüttungen aus Kugeln und Raschigringen gemessenen Dispersionskoeffizienten wachsen mit zunehmender Gas- und Flüssigkeitgeschwindigkeit sowie mit größer werdender Zähigkeit der flüssigen Phase. Sie sind wesentlich geringer als die in vergleichbaren Blasensäulen gemessenen und werden in Aufstromkolonnen offensichtlich stark von den geometrischen Abmessungen der Schüttung beeinflusst. Unter Verwendung dimensionsloser Kenngrößen lassen sich die hier gemessenen Dispersionskoeffizienten zusammen mit vergleichbaren Werten einer früheren Arbeit⁵⁾ durch folgende Regressionsgleichung beschreiben:

$$\frac{D_{AF}}{V_F} = 0,32(1-\varepsilon) \text{Re}_{oF}^{0,73} \cdot \text{Sc}_F^{1,15} \cdot (u_{oG}/u_{oF})^{0,47}$$

In dem untersuchten Bereich lassen sich damit die Dispersionskoeffizienten der flüssigen Phase mit einer mittleren Abweichung von etwa 7% vorausberechnen.

Die Vermischung der verteilten Gasphase wird im wesentlichen durch vier Mechanismen verursacht:

- 1) Durch die Koaleszenz und Neuverteilung der Blasen, die vor allem durch die Füllkörper erzwungen wird.
- 2) Durch die Blasengrößenverteilung, die eine Geschwindigkeits- und damit Verweilzeitverteilung der Blasen hervorruft.
- 3) Durch das Zurückhalten von Gasblasen in Hohlräumen.
- 4) Durch Kanalbildung bei sehr hohen Gasdurchsätzen.

Diese gleichzeitig ablaufenden Mechanismen können durch einen globalen Dispersionskoeffizienten erfaßt werden, indem man in Analogie zur turbulenten Vermischung der flüssigen Phase das Dispersionsmodell zur Beschreibung der Verweilzeitverteilung zugrunde legt. Die Auswertung der Verweilzeitverteilungskurven, die nach einer Impulsmarkierung der Gasphase registriert und halbautomatisch auf Lochstreifen gespeichert werden, erfolgt auf einem Digitalrechner. Die in einer Raschigringschüttung bei ruhender Flüssigkeit gemessenen Dispersionskoeffizienten sind vor allem im unteren Bereich stark vom Gasdurchsatz abhängig und nehmen offensichtlich mit wachsender Zähigkeit der flüssigen Phase ab. Insgesamt liegen sie unterhalb der in Blasensäulen gemessenen Werte, da infolge der Füllkörperschüttung das Blasengrößenspektrum relativ schmal ist und größere Zirkulationsströmungen unterdrückt werden.

Bei der Wahl des Indikators für die Markierung der Gasphase muß u.a. darauf geachtet werden, daß er in der flüssigen Phase möglichst unlöslich ist, da sonst durch die Ab- und Desorption des Spurgases eine zusätzliche Verbreiterung des Verweilzeitpektrums hervorgerufen wird. Es wird eine Methode angegeben, mit welcher der prozentuale Anteil der Löslichkeit an der Varianz der aus Dispersion und Löslichkeit resultierenden Verweilzeitverteilung für jedes Spurgas ermittelt werden kann.

Durch die simultane Lösung der Materialbilanzgleichungen für beide Phasen wird schließlich am Beispiel der CO_2 -Absorption gezeigt, wie groß der Einfluß der Axialdispersion beider Phasen auf den Austauschgrad in einer Aufstromkolonne ist. Bei Variation des volumetrischen Stoffaustauschkoeffizienten über den ganzen in der Praxis vorkommenden Bereich ergibt sich mit den gemessenen Dispersionskoeffizienten eine maximale Abweichung von 3% gegenüber den Endkonzentrationen, die unter Annahme idealer Pfropfenströmung berechnet werden. Etwas größere Abweichungen können dann auftreten, wenn bei gleichzeitig hohen Gas- und geringen Flüssigkeitsbelastungen extrem kurze Kolonnen verwendet werden.

VII. A N H A N G

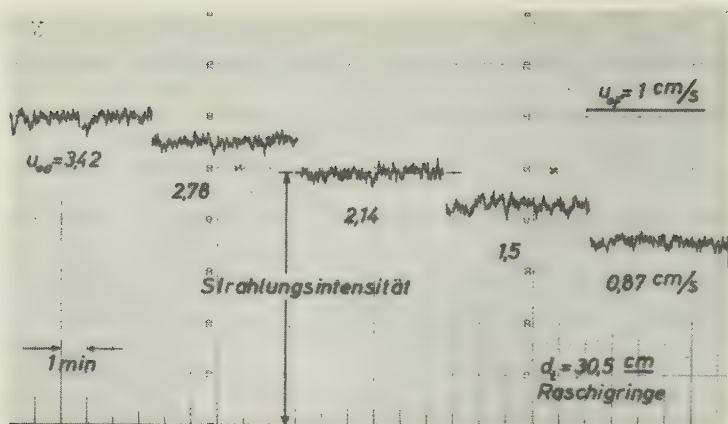


Abb. 1a: Registrierung der Strahlungsintensität

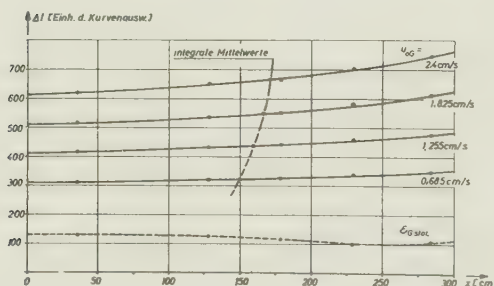
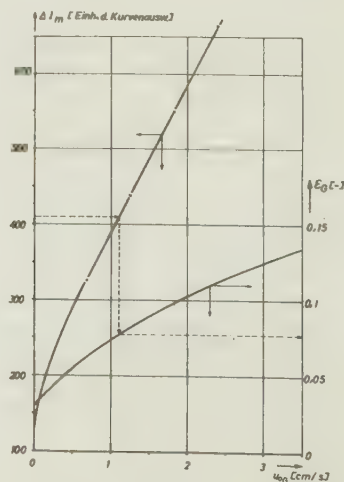


Abb. 2a:
Bildung integraler
Mittelwerte

Abb. 3a:

Zuordnung von Strahlungsintensität und Gasvolumenanteil



A1 Eichung der Meßeinrichtung für die γ -Strahlungsabsorption

Wegen der turbulenten Bewegung der Gasblasen in der Kolonne und der statistischen Schwankung der Energie des Strahlers liefert der Detektor ein stark schwankendes Ausgangssignal. Deshalb wurde die über ein längeres Zeitintervall aufgenommene Meßkurve (s. Abb. 1a) von einem automatischen Kurvenauswerter mit einem Vorschub von 0,25 mm abgetastet, um einen repräsentativen Mittelwert zu bekommen.

Aufgrund der schweren Abschirmung mußte die Strahlungsquelle ortsfest oberhalb des Anströmbodens montiert werden. Daher wurde zur Bestimmung des Gasleerraumanteils als Funktion der Kolonnenhöhe statt des Strahlers der Flüssigkeitsspiegel über dem Meßpunkt variiert.

Da als Eichwerte jeweils nur aus Überlauffmessungen bekannte integrale Mittelwerte von ε_G vorliegen, wurden von den bei verschiedenen Höhen gefundenen Meßwerten ebenfalls die integralen Mittelwerte gebildet (s. Abb. 2a). Diesen Mittelwerten wurden dann die dem jeweiligen Gasdurchsatz entsprechenden ε_G -Werte zugeordnet (s. Abb. 3a). Die aus dieser Zuordnung resultierende Eichkurve (s. Abb. 4a) erlaubt schließlich die Umrechnung von Intensitätswerten in ε_G -Werte.

Zur Ermittlung der Abhängigkeit des Gasleerraumanteils vom Flüssigkeitsdurchsatz genügt es, die bei ruhender Flüssigkeit an einer Stelle gemessenen Intensitäten den jeweiligen integralen Mittelwerten von ε_G zuzuordnen (s. Kurve b in Abb. 4a), da in verschiedenen Höhen eine proportionale Änderung von ε_G mit u_{OF} anzunehmen ist.

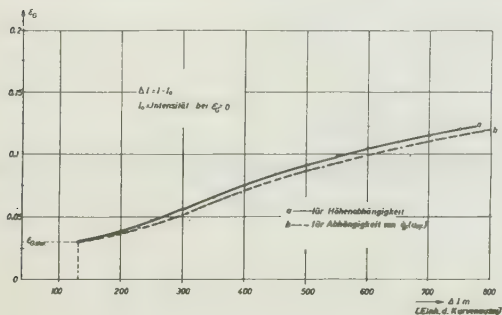


Abb.4a: Eichkurve

A2 Korrelation der Korrekturfunktion

Für die in Kap. III.4. definierte Funktion

$$\mathcal{Y} = f(u_{oF}, u_{oG}, O_V, \mathcal{E}, d_p, d_t, v_F, \sigma_F, \delta_G, \delta_F)$$

soll eine Korrelationsgleichung aufgestellt werden. Da bei den Versuchen zur Bestimmung des Druckverlustes $v_F, \sigma_F, \delta_G, \delta_F$ und d_t nicht unabhängig von den anderen Einflußgrößen variiert wurden, kann $\mathcal{Y}$ nur als $f(u_{oF}, u_{oG}, O_V, \mathcal{E}, d_p)$ ermittelt werden. Da weiterhin O_V eine Funktion von d_p ist und $\mathcal{E}$ in etwa proportional zu O_V ansteigt, soll hier in erster Näherung

$$\mathcal{Y} = f(u_{oF}, u_{oG}, O_V)$$

angenommen werden.

Nach einer von Brandon³⁷⁾ vorgeschlagenen Methode sei

$$\mathcal{Y}_o = C \cdot f_1(u_{oF}) \cdot f_2(u_{oG}) \cdot f_3(O_V) \quad (1a)$$

mit

$$\mathcal{Y}_o = \mathcal{Y} / \bar{\mathcal{Y}}$$

Bei den hier zugrunde liegenden 81 Versuchen war:

$$\bar{\mathcal{Y}} = \frac{\sum \mathcal{Y}}{N} = 0,6485$$

In einem ersten Schritt wird $\mathcal{Y}_o$ über u_{oF} aufgetragen (s. Abb. 5a). Bei der starken Streuung kann für die mittlere Abnahme von $\mathcal{Y}_o$ mit u_{oF} in erster Näherung nur eine lineare Beziehung

$$f_1(u_{oF}) = b_o + b_1 \cdot u_{oF}$$

angenommen werden.

Nach Bestimmung der Koeffizienten nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate:

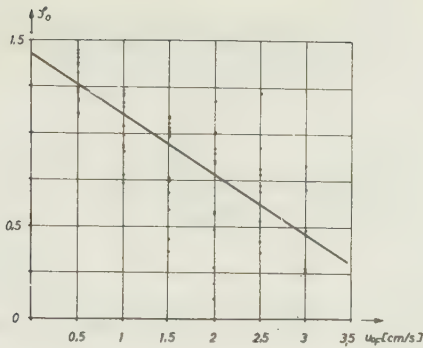


Abb.5a: Die Abhängigkeit vom Flüssigkeitsdurchsatz

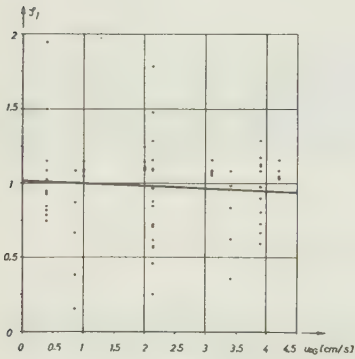


Abb.6a:
Die Abhängigkeit vom Gas-
durchsatz

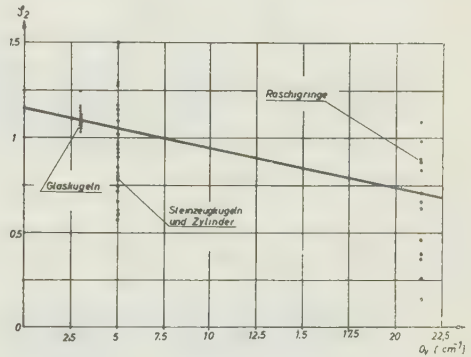


Abb.7a:
Die Abhängigkeit von der spezi-
fischen Oberfläche O_V

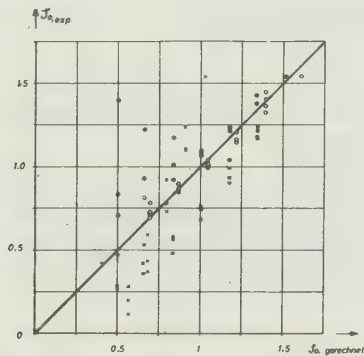


Abb.8a: Korrelation der Korrekturfunktion

$$b_0 = \frac{(\sum \varphi_0)(\sum u_{oF}^2) - (\sum u_{oF})(\sum u_{oF} \cdot \varphi_0)}{N \sum u_{oF}^2 - (\sum u_{oF})^2}$$

$$b_1 = \frac{N \sum u_{oF} \varphi_0 - (\sum u_{oF})(\sum \varphi_0)}{N \sum u_{oF}^2 - (\sum u_{oF})^2}$$

wird:

$$f_1(u_{oF}) = 1,4255 - 0,3192 u_{oF}$$

Im zweiten Schritt wird

$$\varphi_1 = \frac{\varphi_0}{f_1(u_{oF})}$$

über u_{oG} aufgetragen (s. Abb. 6a). Hier zeigt die starke Streuung um $\varphi_1 = 1$, daß kein eindeutiger Zusammenhang zwischen φ und dem Gasdurchsatz existiert. Bei Annahme einer linearen Abhängigkeit folgte für f_2 :

$$f_2(u_{oG}) = 1,0162 - 0,00714 \cdot u_{oG}$$

Setzt man $f_2(u_{oG}) = 1$, dann vereinfacht sich die weitere Rechnung ohne nennenswerten Verlust an Genauigkeit.

In einem dritten Schritt wird

$$\varphi_2 = \frac{\varphi_0}{f_1(u_{oF}) \cdot f_2(u_{oG})}$$

über 0_V aufgetragen (s. Abb. 7a). Nimmt man wieder eine lineare Beziehung an, so folgt:

$$f_3(0_V) = 1,1546 - 0,0208 0_V$$

Schließlich wird die Konstante C aus

$$C = \frac{1}{N} \sum \left(\frac{\mathcal{Y}_0}{f_1(u_{OF}) \cdot f_2(u_{OG}) \cdot f_3(0_V)} \right)$$

ermittelt. Mit

$$C = 1,008$$

wird schließlich:

$$\mathcal{Y}_0 = 1,008 (1,4255 - 0,3192 u_{OF}) (1,1546 - 0,0208 0_V)$$

oder:

$$\mathcal{Y}_0 = 1,66 (1 - 0,224 u_{OF}) (1 - 0,018 0_V) \quad (2a)$$

Die Auftragung der experimentell bestimmten Werte für $\mathcal{Y}_0$ über den nach Gleichung (2a) berechneten (s. Abb. 8a) zeigt, daß $\mathcal{Y}_0$ offensichtlich noch durch andere als die in dem Ansatz (Gl. (1a)) enthaltenen Größen beeinflusst wird.

Mit $\mathcal{Y} = \mathcal{Y}_0 \cdot \bar{\mathcal{P}}$ wird schließlich:

$$\mathcal{Y} = 1,076 (1 - 0,224 u_{OF}) (1 - 0,018 0_V) \quad (3a)$$

Nach Einsetzen von Extremwerten für u_{OF} und 0_V ergibt sich, bezogen auf die in Kap. III.4. angenommene mittlere Funktion

$$\bar{\mathcal{P}} = 1 \cdot (1 - 0,25 u_{OF})$$

eine maximale Abweichung von 13%. In der Beziehung für den Gesamtdruckverlust

$$\delta_{\text{ges}} = \delta_F + \delta_F - \mathcal{Y} (\delta_F - \delta_0)$$

bringt die Verwendung von Gleichung (3a) weniger als 1% Verbesserung, so daß die Vereinfachung durch Annahme von $\bar{\mathcal{P}}$ für den untersuchten Bereich gerechtfertigt erscheint.

A3 Elektrische Schaltpläne der Handeingabe

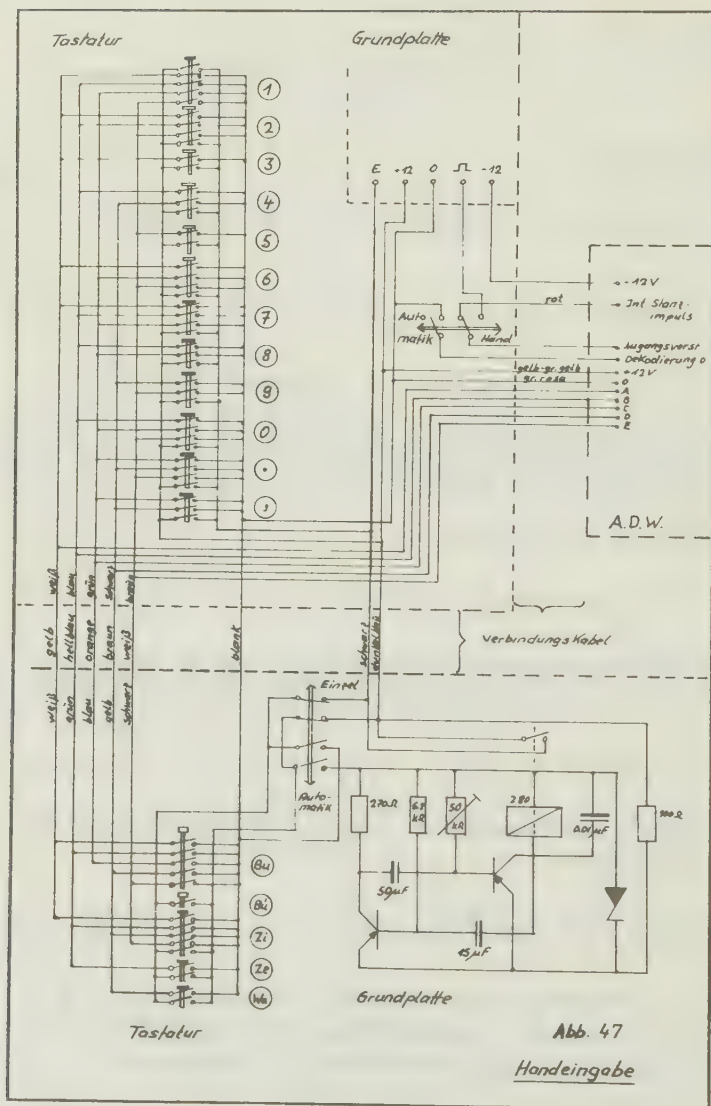
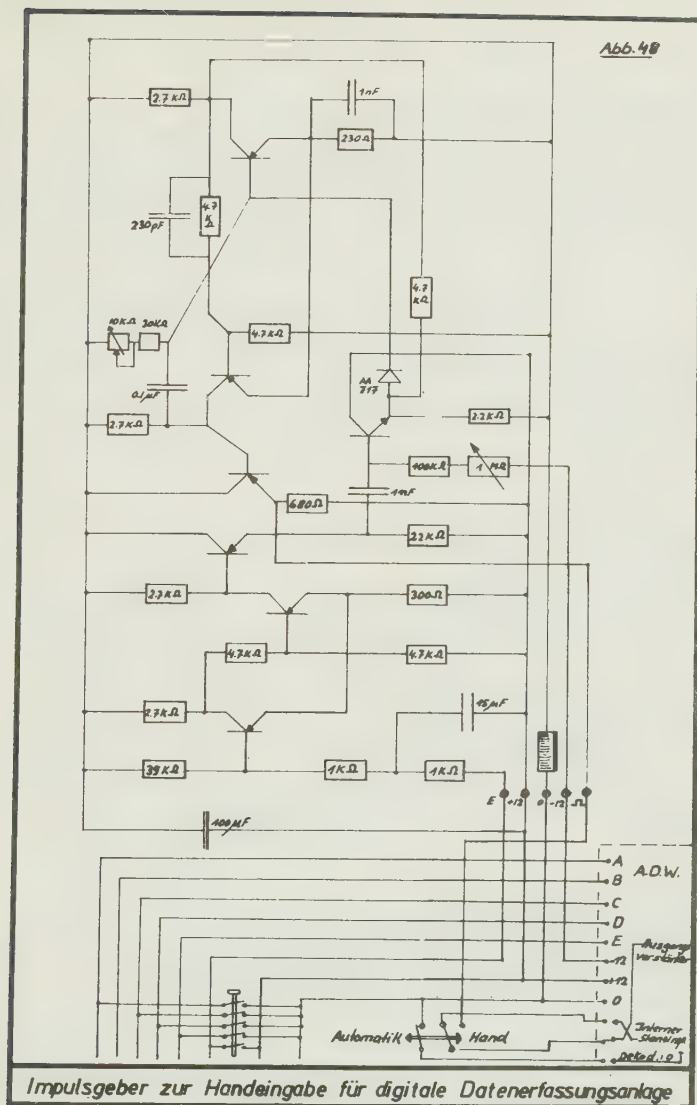


Abb. 47

Handeingabe



A4 Algolprogramm zur Berechnung des axialen
Dispersionskoeffizienten der flüssigen Phase

```

$ TRANSLATE,PUNCH
'BEGIN' 'COMMENT' AXIALMISCHUNG IN AUFSTROMKOLONNEN.,
'INTEGER' I, L, N, TAG, MON, JAHR, VERSNR, M.,
'REAL' UFL, NUE32, NUE21, NUE31, SIG32, SIG21, SIG31, B032, B021, B031, DA32, DA
DA31, DA1, DA2, DA3, B0D1, B0D2, B0D3.,
'INTEGER' 'ARRAY' A, B, X (/1..3/)., 'ARRAY' K (/1..150, 1..3/),
F (/3..14/), C (/1..20, 1..3/), S, P, Q, SAQ, KFAKT, DC, M1, M2, DM, SK, NUE, S
BR, B0D, CMAX (/1..3/).,

'PROCEDURE' ERGEBNIS (VERSNR, TAG, MON, JAHR, UFL, NUE21, NUE31, NUE32, B021,
B031, B032, DA21, DA31, DA32, DA1, DA2, DA3, F, B0D, B).,
'INTEGER' VERSNR, TAG, MON, JAHR.,
'REAL' UFL, NUE21, NUE31, NUE32, B021, B031, B032, DA21, DA31, DA32, DA1, DA2,
DA3.,
'INTEGER' 'ARRAY' B., 'ARRAY' F, B0D.,
'CODE'.,

'PROCEDURE' MITTEL (I, C, M, S, P, Q, BR).,
'INTEGER' I., 'ARRAY' C, M, S, P, Q, BR.,
'BEGIN' 'INTEGER' K, L.,
'FOR' L.=1, 2, 3 'DO' M (/L/).=0.,
'FOR' K.=1 'STEP' 1 'UNTIL' 20 'DO' 'FOR' L.=1, 2, 3 'DO'
'BEGIN' 'IF' A (/L/) 'NOTEQUAL' 0 'THEN'
'BEGIN'
C (/K, L/).=C (/K, L/)-KFAKT (/L/).,
M (/L/).=M (/L/)+C (/K, L/)/20.,
S (/L/).=S (/L/)+C (/K, L/).,
P (/L/).=P (/L/)+(1+K)*C (/K, L/).,
Q (/L/).=Q (/L/)+(1+K)*(1+K)*C (/K, L/).,
'IF' P (/L/) 'NOTEQUAL' 0 'THEN'
BR (/L/).= Q (/L/)*S (/L/)/(P (/L/)*P (/L/)).,
'END'.,
'END'., 'END'.,

READ (TAG, MON, JAHR, VERSNR).,
WRITE (' VERSNR = '), TYPE (VERSNR).,
WRITE (' DATUM.. '), TYPE (TAG)., WRITE ('.'.''), TYPE (MON).,
WRITE ('.'.''), TYPE (JAHR)., OUTPUT (20, '///'),
'FOR' I.=3 'STEP' 1 'UNTIL' 14 'DO' READ (F (/I/)).,

'FOR' L.=1, 2, 3 'DO' S (/L/).=P (/L/).=Q (/L/).=SK (/L/).=SAQ (/L/).=
BR (/L/).=0.,

'FOR' I.=1 'STEP' 1 'UNTIL' 150 'DO' 'FOR' L.=1, 2, 3 'DO'
'BEGIN' READ (K (/I, L/)).,
SK (/L/).=SK (/L/)+K (/I, L/).,
'END'.,

'FOR' L.=1, 2, 3 'DO' KFAKT (/L/).=SK (/L/)/150.,

```

```

'FOR' I.=1'STEP'1'UNTIL'150'DO''FOR' L.=1,2,3'DO'
  SAQ(/L/).=SAQ(/L/)+(K(/I,L/)-KFAKT(/L/))'POWER'2.,
'FOR' L.=1,2,3'DO''BEGIN'STR(/L/).=F(/3/)*SQRT(SAQ(/L/)/1490).,
                                X(/L/).=A(/L/).=B(/L/).=1.,
                                'END'.,

WRITE('' SAQ '').,
PRINT(SAQ(/1/),SAQ(/2/),SAQ(/3/)).,
WRITE('' STR '').,
PRINT(STR(/1/),STR(/2/),STR(/3/)).,
OUTPUT(20,''/').,
I.=0.,
'FOR' M.=1'STEP'1'UNTIL'20'DO''FOR' L.=1,2,3'DO'READ(C(/M,L/)).,
  MITTEL(I,C,M1,S,P,Q,BR).,
WRITE('' M1 '').,
PRINT(M1(/1/),M1(/2/),M1(/3/)).,
OUTPUT(20,''/').,
I.=20.,
CMAX.=0.,

LESE..'FOR' M.=1'STEP'1'UNTIL'20'DO''FOR' L.=1,2,3'DO'
  'BEGIN' READ(C(/M,L/)).,
    'IF' C(/M,L/)'GREATER' CMAX(/L/)' THEN' CMAX(/L/).=C(/M,L/).,
    'END'.,
    MITTEL(I,C,M2,S,P,Q,BR).,
WRITE('' M2 '').,
PRINT(M2(/1/),M2(/2/),M2(/3/)).,
WRITE('' BR '').,
PRINT(BR(/1/),BR(/2/),BR(/3/)).,
  'FOR' L.=1,2,3'DO'
    'BEGIN'
      DM(/L/).=(M2(/L/)-M1(/L/))*A(/L/).,
      M1(/L/).=M2(/L/).,
      B(/L/).=B(/L/)+A(/L/).,
    'END'.,
WRITE('' DM '').,
PRINT(DM(/1/),DM(/2/),DM(/3/)).,
  'FOR' L.=1,2,3'DO'
    'BEGIN'
      'IF' X(/L/)'EQUAL'1'THEN'
        'BEGIN' 'IF' DM(/L/)'NOTGREATER'-15'THEN'
          X(/L/).=2.,
        'END'
        'ELSE'
          'BEGIN' 'IF' 8*BR(/L/)-7'GREATER'0'THEN'
            BOD(/L/).=(1+SQRT(8*BR(/L/)-7))/(BR(/L/)-1).,
            'IF' ABS(DM(/L/))'NOTGREATER'0.5'OR'
              M2(/L/)'NOTGREATER'0.01*CMAX(/L/)' THEN' A(/L/).=0.,
          'END'.,
        'END'.,
    'END'.,
WRITE('' BOD '').,
PRINT(BOD(/1/),BOD(/2/),BOD(/3/)).,
OUTPUT(20,''/').,

'IF' A(/3/)'EQUAL'0'THEN' 'GOTO'RECHNE
'ELSE' 'BEGIN' I.=I+20.,
'GOTO'LESE
'END'.,

```

```

RECHNE.. OUTPUT(20,''////''),
WRITE(''CMAX '''),
PRINT (CMAX(/1/),CMAX(/2/),CMAX(/3/))..

WRITE(''M2 '''),
PRINT(M2(/1/),M2(/2/),M2(/3/))..
WRITE(''DM '''),
PRINT(DM(/1/),DM(/2/),DM(/3/))..
    UFL.=F(/14/)/(2.83*F(/10/)*F(/4/)*F(/4/))..
    'FOR'L.=1,2,3'DO'
    NUE(/L/).=P(/L/)/S(/L/)..

SIG32.=Q(/3/)/S(/3/)-NUE(/3/)*NUE(/3/)
-Q(/2/)/S(/2/)+NUE(/2/)*NUE(/2/)..
SIG21.=Q(/2/)/S(/2/)-NUE(/2/)*NUE(/2/)
-Q(/1/)/S(/1/)+NUE(/1/)*NUE(/1/)..
SIG31.=Q(/3/)/S(/3/)-NUE(/3/)*NUE(/3/)
-Q(/1/)/S(/1/)+NUE(/1/)*NUE(/1/)..
NUE32.=NUE(/3/)-NUE(/2/)..
NUE21.=NUE(/2/)-NUE(/1/)..
NUE31.=NUE(/3/)-NUE(/1/)..
B032.=2*NUE32*NUE32/SIG32..
B021.=2*NUE21*NUE21/SIG21..
B031.=2*NUE31*NUE31/SIG31..
DA32.=UFL*F(/8/)/B032..
DA21.=UFL*F(/7/)/B021..
DA31.=UFL*F(/6/)/B031..
DA1.=UFL*54/BOD(/1/)..
DA2.=UFL*100/BOD(/2/)..
DA3.=UFL*200/BOD(/3/)..

ERGEBNIS(VERSNR,TAG,MON,JAHR,UFL,NUE21,NUE31,NUE32,B021,B031,B032,
DA21,DA31,DA32,DA1,DA2,DA3,F,BOD,B)..
'END' PROGRAMM..

$ TRANSLATE,PROCEDURE
'BEGIN'
'PROCEDURE'ERGEBNIS(VERSNR,TAG,MON,JAHR,UFL,NUE21,NUE31,NUE32,B021,
B031,B032,DA21,DA31,DA32,DA1,DA2,DA3,F,BOD,B)..
'INTEGER' VERSNR,TAG,MON,JAHR..
'REAL' UFL,NUE21,NUE31,NUE32,B021,B031,B032,DA21,DA31,DA32,DA1,DA2,
DA3..
'INTEGER' 'ARRAY' B.., 'ARRAY' F,BOD..

'BEGIN'
'PROCEDURE' ZAHLD(R(W))..
'REAL' W..
'BEGIN' 'INTEGER' Z,V,I,K..
'PROCEDURE' DRZAH(L(ZAHL,ZEICHENZAHL,ZWVOR,ZWNACH))..
'VALUE' ZAHL,ZEICHENZAHL,ZWVOR,ZWNACH..
'REAL' ZAHL..
'INTEGER' ZEICHENZAHL,ZWVOR,ZWNACH..
'CODE'..

```

```

'FOR'I.=4'STEP'-1'UNTIL'1'DO'
'BEGIN'K.=10'POWER'I.,
'IF'W'GREATER'K'THEN'BEGIN'Z.=I+5.,
                                V.=10-Z.,
                                DRZHL(W,Z,V,2).,
                                'GOTO'EX.,
                                'END'.,
'END'.,
DRZHL(W,5,5,2).,
EX..'END'.,

```

```

OUTPUT(20,'**')., WRITE(''
AXIALER DISPERSIONSKOEFFIZIENT DER FLUESSIGPHASE
=====
IN AUFSTROMKOLONNEN
=====

```

```

                                VERSUCH-NR. '')., TYPE(VERSNR).,
OUTPUT(20,'//')., WRITE(''
                                '')., TYPE(TAG).,WRITE(''.').,
TYPE(MON)., WRITE(''.').,TYPE(JAHR)., WRITE(''

```

```

KOLONNENDURCHMESSER           = '').,
ZHLDR(F(/4/)).,
WRITE('' CM

```

```

FUELLKOEPPERDURCHMESSER       = '').,
ZHLDR(F(/5/)).,
WRITE('' CM

```

```

MESSLAENGE 3-2                 = '').,
ZHLDR(F(/8/)).,
WRITE('' CM

```

```

MESSLAENGE 2-1                 = '').,
ZHLDR(F(/7/)).,
WRITE('' CM

```

```

MESSLAENGE 3-1                 = '').,
ZHLDR(F(/6/)).,
WRITE('' CM

```

```

HOLDUP DER GASPHASE            = '').,
ZHLDR(F(/9/)).,
WRITE(''

```

```

HOLDUP DER FLUESSIGPHASE       = '').,
ZHLDR(F(/10/)).,
WRITE(''

```

```

OBERFLAECHENSANNUNG           = '').,
ZHLDR(F(/11/)).,
WRITE('' DYN/CM

```

```

ZAEHIGKEIT DER FLUESSIGPHASE = '').,
ZHLDR(F(/12/)).,
WRITE('' CM*CM/SEC

```

```

GASDURCHSATZ                = '')..,
ZAHLDR(F(/13/))..,
WRITE('' L/MIN

FLUESSIGKEITSDURCHSATZ      = '')..,
ZAHLDR(F(/14/))..,
WRITE('' L/H

STATIST. SICHERHEITSFAKTOR   = '')..,
ZAHLDR(F(/3/))..,
WRITE(''

GESCHW. DER FLUESSIGPHASE    = '')..,
ZAHLDR(UFL)..,
WRITE('' CM/SEC

MITTL. VERWEILZEIT 3-2       = '')..,
ZAHLDR(NUE32/3)..,
WRITE('' SEC

MITTL. VERWEILZEIT 2-1       = '')..,
ZAHLDR(NUE21/3)..,
WRITE('' SEC

MITTL. VERWEILZEIT 3-1       = '')..,
ZAHLDR(NUE31/3)..,
WRITE('' SEC

BOD3 = '').., ZAHLDR(BOD(/3/))..,
        WRITE('' BO 3-2 = '')..,
ZAHLDR(BO32)..,
WRITE(''

BOD2 = '').., ZAHLDR(BOD(/2/))..,
        WRITE('' BO 2-1 = '')..,
ZAHLDR(BO21)..,
WRITE(''

BOD1 = '').., ZAHLDR(BOD(/1/))..,
        WRITE('' BO 3-1 = '')..,
ZAHLDR(BO31)..,
WRITE(''

DA 3 = '').., ZAHLDR(DA3)..,
        WRITE('' DA 3-2 = '')..,
ZAHLDR(DA32)..,
WRITE('' CM*CM/SEC

DA 2 = '').., ZAHLDR(DA2)..,
        WRITE('' DA 2-1 = '')..,
ZAHLDR(DA21)..,
WRITE('' CM*CM/SEC

DA 1 = '').., ZAHLDR(DA1)..,
        WRITE('' DA 3-1 = '')..,
ZAHLDR(DA31)..,
WRITE('' CM*CM/SEC

KURVENENDE 1 = '').., TYPE(B(/1/))..,
WRITE('' KURVENENDE 2 = '').., TYPE(B(/2/))..,
WRITE('' KURVENENDE 3 = '').., TYPE(B(/3/)).., OUTPUT(20,''/')..,
'END'..,

'END'

```

AXIALER DISPERSIONSKOEFFIZIENT DER FLUESSIGPHASE
 =====
 IN AUFSTROMKOLONNEN
 =====

VERSUCH-NR. 26

3.1.1968

KOLONNENDURCHMESSER	=	30.5	CM
FUELLKOERPERDURCHMESSER	=	1	CM
MESSLAENGE 3-2	=	100	CM
MESSLAENGE 2-1	=	62	CM
MESSLAENGE 3-1	=	162	CM
HOLDUP DER GASPHASE	=	0.092	
HOLDUP DER FLUESSIGPHASE	=	0.578	
OBERFLAECHENSPANNUNG	=	71	DYN/CM
ZAEHIGKEIT DER FLUESSIGPHASE	=	0.01	CM*CM/SEC
GASDURCHSATZ	=	38	L/MIN
FLUESSIGKEITSDURCHSATZ	=	3250	L/H
STATIST. SICHERHEITSAKTOR	=	1.96	
GESCHW. DER FLUESSIGPHASE	=	2.135	CM/SEC
MITTL. VERWEILZEIT 3-2	=	50	SEC
MITTL. VERWEILZEIT 2-1	=	35.232	SEC
MITTL. VERWEILZEIT 3-1	=	85.232	SEC
BOD3 = 149.306	BO 3-2 =	65.711	
BOD2 = 83.847	BO 2-1 =	49.113	
BOD1 = 34.702	BO 3-1 =	114.727	
DA 3 = 2.861	DA 3-2 =	3.25	CM*CM/SEC
DA 2 = 2.547	DA 2-1 =	2.696	CM*CM/SEC
DA 1 = 3.323	DA 3-1 =	3.015	CM*CM/SEC

KURVENENDE 1 = 7 KURVENENDE 2 = 14 KURVENENDE 3 = 23

A5 Algolprogramm zur Berechnung des axialen
Dispersionskoeffizienten der Gasphase

```
$ TRANSLATE
'BEGIN'
'COMMENT' AXIALDISPERSION DER GASPHASE IN RASCHIGRINGSCHUETTUNGEN
K   =ANZAHL DER VERSUCHE
UGO =AUF KOLONNENQUERSCHNITT BEZOGENE GASGESCHWINDIGKEIT
P   =PAPIERVORSCHUB DES SCHREIBERS (MM PRO SEC.)
L   =HOEHE DER KOLONNE
SM2 =VARIANZ DER ANTWORTFUNKTION DER MESSEINRICHTUNG ALLEIN
TM  =MITTLERE VERWEILZEIT IN DER MESSEINRICHTUNG ALLEIN
A   =MASS FUER DIE ORDINATEN
F   =FLAECHE DER VERWEILZEITVERTEILUNGSKURVEN
T   =MITTLERE VERWEILZEIT DES GASES IN DER KOLONNE
U   =MITTLERE AUFSTIEGSGESCHWINDIGKEIT DER GASPHASE
S2  =VARIANZ
BO  =BODENSTEINSCH ZAHLE
DA  =AXIALER MISCHKOEFFIZIENT
EPS =HOLDUP DER GASPHASE.,

'INTEGER' I,K.,
'REAL' UGO,P,L,EPS,SM2,TM,A,F,T,U,S2,BO,DA.,
'FOR' K.=1 'STEP' 1 'UNTIL' 50 'DO'
'BEGIN'
READ(UGO,EPS).,
F.=0., T.=0., S2.=0., I.=0.,
SM2.=15.122., TM.=7.0., P.=2., L.=292.3.,
LESE.. READ(A).,
'IF' A 'EQUAL' 9999 'THEN' 'GO TO' RECHNE
      'ELSE' 'BEGIN'
          I.=I+1.,
          F.=F+A.,
          T.=T+A*I.,
          S2.=S2+A*I*I.,
          'GO TO' LESE.,
      'END'.,
RECHNE.. T.=T/F/P., S2.=S2/F/P/P-T*T-SM2.,
T.=T-TM., S2.=S2/T/I.,
U.=UGO/EPS.,
BO.=1/S2+SQRT(1/S2/S2+3/S2)., DA.=U*L/BO.,

WRITE(''
UGO= '' ),TYPE(UGO).,
WRITE(''
T= '' ),TYPE(T).,
WRITE(''
S2= '' ),TYPE(S2).,
WRITE(''
BO= '' ),TYPE(BO).,
WRITE(''
DA= '' ),TYPE(DA).,
WRITE(''
U= '' ),TYPE(U).,
OUTPUT(20,''/').,
'END'
'END'.,
$ ENDOFFILE
```

VIII. Symbolverzeichnis

=====

a	spezifische Phasengrenzfläche	cm^2/cm^3
A	Phasengrenzfläche	cm^2
c	Konzentration	Mol/l
d	Durchmesser	cm
D	Dispersionskoeffizient	cm^2/s
F	Querschnitt	cm^2
g	Erdbeschleunigung	cm/s^2
G	Gewicht	p
h	Höhe der Wassersäule	cm
H	Kolonnenhöhe	cm
H_T	Henrykoeffizient	Mol/Mol
k_r	Reaktionsgeschwindigkeitskonstante	$1/\text{s}$
K	Stoffaustauschkoeffizient	cm/s
l	Länge	cm
M	Molekulargewicht	g/Mol
M_n	Moment	$t^{(n+1)} \cdot f(t)$
N	Anzahl der Meßwerte	-
N	$= D_{AG} \cdot K_G \cdot a \cdot \varepsilon / \varepsilon_G \cdot u_G^2$, Parameter	-
O_V	spezifische Oberfläche	cm^2/cm^3
p	Druck	p/cm^2

$\dot{q}$	Durchsatz	l/min
r	Reaktionsgeschwindigkeit	Mol/cm ³ · s
R	Gaskonstante	cm · p/Mol · grad
s	Standardabweichung	f
s	Quellterm	Mol/cm ³ s
t	Zeit	s
t_0	Durchbruchszeit, d.h. Aufenthaltszeit der schnellsten Blasen	s
$\bar{t}$	mittlere Aufenthaltszeit individueller Einzelteilchen	s
u	effektive Strömungsgeschwindigkeit	cm/s
u_0	auf den leeren Kolonnenquerschnitt bezogene Strömungsgeschwindigkeit (= Durchsatz)	$\frac{\text{cm}^3}{\text{cm}^2 \text{ s}} = \frac{\text{cm}}{\text{s}}$
U	Umfang	cm
V	Volumen	cm ³
x	Längenkoordinate	cm
X	Umsatz (= $1 - c_i/c_{i0}$)	-
α	Widerstandskoeffizient (Gas-Füllkörper)	-
β	Korrekturfaktor (= $p(H)/p(x)$)	-
γ	spezifisches Gewicht	p/cm ³
γ^*	spezifisches Gewicht der beiden als homogen durchmischt angenommenen fluiden Phasen	p/cm ³
δ	Druckänderung pro Höhe der Kolonne	p/cm ² · cm

δ_0	Druckänderung bei ruhender Flüssigphase	$\text{p/cm}^2 \cdot \text{cm}$
ε	Volumenanteil	-
η	Austauschgradverminderung ($= c_{\text{FDisp}}/c_{\text{FPlug}}$)	-
η_r	Umsatzverminderung ($= X_{\text{Disp}}/X_{\text{Plug}}$)	-
η_f	dyn. Zähigkeit der flüssigen Phase	$\text{dyn} \cdot \text{s/cm}^2$
Θ	Integrationsende	s
λ	prozentualer Anteil der Löslichkeit ($= \sigma_L^2 / (\sigma_L^2 + \sigma_D^2)$)	-
ν	kinematische Zähigkeit	cm^2/s
ρ	Dichte	g/cm^3
σ	Oberflächenspannung	dyn/cm
σ^2	Varianz	s^2
τ	mittlere Verweilzeit	s
τ_{xx}	Schubspannung	p/cm^2
γ	Korrekturfunktion (Gl.(32))	-
ψ	Widerstandskoeffizient (Flüssigkeit-Füllkörper)	-

Indices	Dimensionslose Kennzahlen
a außen, Anfang	$Bo = \frac{u \cdot H}{D_A}$ (Bodenstein)
A Axial	
B Blase	$Eu = \frac{\Delta p}{u^2 \cdot \varphi}$ (Euler)
dyn dynamisch	
D Dispersion, Düse	$Fr = \frac{u^2}{d \cdot g}$ (Froude)
F Flüssigphase	
G Gasphase	$Ga = \frac{g \cdot d_p^3}{\gamma^2}$ (Galilei)
h hydraulisch	
K Festkörper, Kolonne	$Pe = \frac{u \cdot d_p}{D_A}$ (Peclet)
L Löslichkeit	
M Molekular	$Re = \frac{u \cdot d_p}{\gamma}$ (Reynolds)
p Partikel, Füllkörper	$Re_o = \frac{u_o}{0,75(1-\epsilon)\gamma}$ (Reynolds)
R Reaktion	
t Kolonne, Turm	
ü Überlauf	
W Wasser	

IX. Literaturverzeichnis

=====

- 1) H.Weber: Dissertation, TH Darmstadt 1961
- 2) J.Sendin: Diplom-Arbeit, TH Darmstadt 1963
- 3) G.Bub: Studien-und Diplom-Arbeit, TH Darmstadt 1964
- 4) W.Böckes: Studienarbeit, TH Darmstadt 1964
- 5) C.Chang: Studien-und Diplom-Arbeit, TH Darmstadt 1965
- 6) R.Frederking: Studienarbeit, Universität Erlangen-Nürnberg 1968
- 7) P.Gässmann: Physikalische Grundlagen der Chemie-Ingenieur-Technik, Frankfurt 1961
- 8) A.J.Carlton, J.Rennie, F.H.H.Valentin: Belg.Chem.Ind., Compte Rendu T 32(1967) 276
- 9) L.L.van Dierendonck, J.M.H.Fortuin, D.Venderbos: IV.Europ.Symp.on Chem.React .Eng., Brüssel 1968
- 10) M.Diboun, K.Schügerl: Chem.Eng.Sci. 22 (1967) 147
- 11) C.J.Hoogendoorn, J.Lips: Can.J.of Chem.Eng. 43 (1965) 125
- 12) E.Kunugita, T.Otake, T.Jamanishi: Kogaku Kagaku 26 (1962) 800
- 13) H.Langemann, H.Kölbel: Verfahrenstechnik 1 (1967) 5
- 14) G.D.Towell, C.P.Strand, G.H.Ackermann: A.I.Ch.E.-1.Chem.Eng.Joint Meeting, London 1965, Serie 10, 97
- 15) T.Reith, S.Renken, B.A.Israel: Chem.Eng.Sci. 23 (1968) 619
- 16) D.J.Nicklin: Chem.Eng.Sci. 17 (1962) 693
- 17) T.Reith: Doctoral Thesis, Delft 1968

- 18) O.Levenspiel: Chemical Reaction Engineering, New York 1966
- 19) T.Reith, W.J.Beek: IV.Europ.Symp.on Chem.React.Eng., Brüssel 1968
- 20) A.G.Bridge, L.Lapidus, J.C.Elgin: A.I.Ch.E.J. 10 (1964) 819
- 21) W.Siemes, E.Borchers: Chemie-Ingenieur-Technik 28 (1956) 783
- 22) P.H.Calderbank, M.B.Moo-Young, R.Bibby: Proc.of the III.Europ.Symp. on Chem.React.Eng., Brüssel (1964) 91
- 23) P.Eisenklamm, L.H.Ford: Proc.Symp.Interaction Fluids Solids, Inst.Chem.Eng.(London 1962) 333
- 24) A.J.Carleton, R.J.Flain, J.Rennie, F.H.H.Valentin: Chem.Eng.Sci. 22 (1967) 1839
- 25) J.C.Charpentier, C.Prost, W.van Swaaij, P. le Goff: Génie Chimique 99 (1968) 803
- 26) T.Tadaki, S.Maeda: Kagaku Kogaku, 2 (1964) 195
- 27) G.A.Hughmark: I.E.C.Proc.Des. and Dev. 6 (1967) 218
- 28) H.Langemann: Verfahrenstechnik 2 (1968) 417
- 29) A.E.Dukler, Moya Wicks, R.G.Cleveland: A.I.Ch.E.J. 10 (1964) 38
- 30) S.Ergun: Ref. in Chemie-Ingenieur-Technik 25 (1953) 262
- 31) H.Brauer: Chemie-Ingenieur-Technik 29 (1957) 785
- 32) L.P.Reiss: I.E.C.Proc.Des. and Dev. 6 (1967) 486
- 33) R.P.Larkins, R.R.White, D.W.Jeffrey: A.I.Ch.E.J. 7 (1961) 231
- 34) W.Siemes, E.Borchers: Chem.Eng.Sci. 12 (1960) 77
- 35) J.Friebe: Dissertation, Darmstadt 1966
- 36) W.Böxkes: Dissertation, Erlangen 1969

- 37) D.B.Brandon: J.S.A.Journal 6 (1959) 70
- 38) I.Michiyoshi, K.Shirataki, K.Takitani:
Int.Chem.Eng. 7 (1967) 159
- 39) M.Bodenstein, K.Wolgast: Z.Physiol.Chem. 61 (1908) 422
- 40) G.Damköhler: "Der Chemie-Ingenieur", Leipzig 1937
- 41) P.V.Danckwerts: Chem.Eng.Sci. 2 (1953) 1
- 42) K.B.Bischoff: Ind.Eng.Chem. 58 (1966) 19
- 43) R.Aris: Chem.Eng.Sci. 9 (1959) 266
- 44) O.Molerus: Chemie-Ingenieur-Technik 38 (1966) 137
- 45) H.Hofmann: Chem.Eng.Sci. 14 (1961) 193
- 46) E.J.Cairns, J.M.Prausnitz: Ind.Eng.Chem. 51 (1959) 1441
- 47) Van der Laan: Chem.Eng.Sci. 7 (1958) 187
- 48) F.D.van Deemter: Chem.Eng.Sci. 13 (1961) 190
- 49) A.Pethö: Chem.Eng.Sci. 23 (1968) 807
- 50) K.B.Bischoff: Dissertation, Chicago 1961
- 51) W.Böxkes: Diplom-Arbeit, Universität Erlangen 1966
- 52) K.B.Bischoff: A.I.Ch.E.J. 14 (1968) 820
- 53) K.Schügerl, M.Diboun: Chem.Techn. 19 (1967) 403
- 54) W.Siemes, W.Weiss: Chemie-Ingenieur-Technik 29
(1957) 727
- 55) M.F.Edwards, J.F.Richardson: Chem.Eng.Sci. 23 (1968) 109
- 56) S.Stemerding: Chem.Eng.Sci. 14 (1961) 209
- 57) D.W.Marquardt: IBM Share Library Nr.3094 (1964)
- 58) P. le Goff, J.-C.Charpentier: Privatmitteilung aus
dem E.N.S.I.C. der Universität Nancy

- 59) H.Kramers, K.R.Westerterp: "Elements of Chemical Reactor Design and Operation", Amsterdam 1963
- 60) J.L.Bauer, T.E.Corrigan: Chem.Eng. 74 (1967) 111
- 61) A.Klinkenberg, F.Sjenitzer: Chem.Eng.Sci. 5 (1956) 258
- 62) O.Levenspiel, K.B.Bischoff: Ind.Eng.Chem. 51 (1959) 1431
- 63) T.Miyauchi, T.Vermeulen: Ind.Eng.Chem. Fundamentals 2 (1963) 304
- 64) T.Otake, E.Kunugita, I.Komasawa: Kagaku Kogaku 3 (1965) 239
- 65) J.G. van de Vusse: Chem.Eng.Sci. 10 (1959) 229.

Herrn Professor Dr.H. Hofmann danke ich für die vielseitige Unterstützung bei der Durchführung dieser Arbeit.

Weiterhin danke ich der Deutschen Forschungsgemeinschaft und der Max Buchner-Forschungstiftung für die finanzielle Unterstützung.

Der Firma Siemens möchte ich für die kostenlose Überlassung von Rechenzeiten auf der Rechenanlage, der Firma Friesseke und Hoepfner für die Bereitstellung der Meßeinrichtung zur -Strahlungs-Absorption danken.

Schließlich danke ich Herrn Widlok und Herrn Schneider für die tatkräftige Mithilfe bei dem Aufbau der Apparatur und der Durchführung der Versuche.

L e b e n s l a u f

- 19.9.1937 geb. in Wittenberg/Elbe
Vater: Dr.-Ing. Karl Heilmann
Mutter: Herta, geb. Schellhorn
- 1943 - 1948 Volksschule in Blönsdorf (Fläming)
und Bad Sachsa
- 1948 - 1949 Pädagogium in Bad Sachsa (Harz)
- 1949 - 1951 Oberschule in Osterode (Harz)
- 1951 - 1957 Helmholtz-Realgymnasium in
Frankfurt/Main
- 28.2.1957 Abitur
- 1.4.1957 - 31.3.1958 Bundeswehr
- 1.4.1958 - 31.10.1958 Industriepraktikum
- 1.11.1958 - 15.5.1964 Maschinenbau-Studium, Technische
Hochschule Darmstadt
- 30.5.1961 Diplom-Vorprüfung
- 6.5.1963 - 9.8.1963 Diplom-Arbeit am Institut für Chemi-
sche Technologie der Technischen
Hochschule Darmstadt
- 15.5.1964 Diplom-Hauptprüfung (Hauptfach:
Chemische Technologie)
- 1.5.1964 - 26.11.1964 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am
Institut für Chemische Technologie
der Technischen Hochschule Darmstadt
- 27.11.1964 - 15.5.1965 Wissenschaftlicher Assistent am
Institut für Chemische Technologie
der Technischen Hochschule Darmstadt
- 16.5.1965 - 31.7.1968 Wissenschaftlicher Assistent am
Institut für Technische Chemie der
Friedrich-Alexander-Universität
Erlangen-Nürnberg
- seit 1.8.1968 Oberassistent am Institut für
Technische Chemie der Friedrich-
Alexander-Universität Erlangen-
Nürnberg

Offsetdruck-Fotodruck

J. Hög, 8520 Erlangen Hauptstr. 109, (Nähe Martin-Luther-Platz) Tel. 22990
